



HAL
open science

Evaluation du micro-endommagement osseux par spectroscopie ultrasonore non-linéaire : vers une mesure quantitative

Sylvain Hauptert

► **To cite this version:**

Sylvain Hauptert. Evaluation du micro-endommagement osseux par spectroscopie ultrasonore non-linéaire : vers une mesure quantitative. Acoustique [physics.class-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2012. Français. NNT : 2012PAO66208 . tel-00831101

HAL Id: tel-00831101

<https://theses.hal.science/tel-00831101>

Submitted on 6 Jun 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse de doctorat de l'université Pierre et Marie Curie

Spécialité :
Acoustique physique

Préparée au :
Laboratoire d'Imagerie Paramétrique

Dans le cadre de l'Ecole Doctorale :
Sciences Mécaniques, Acoustique, Electronique & Robotique de Paris

Présenté par :

Sylvain Haupert

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Pierre et Marie Curie

**Evaluation du micro-endommagement osseux
par spectroscopie ultrasonore non-linéaire.
*Vers une mesure quantitative.***

Directeur de thèse : **Pascal Laugier**

Soutenue le 22 Juin 2012, devant le jury composé de :

Françoise Peyrin	Rapporteur
Koen Van Den Abeele	Rapporteur
Georges Boivin	Examineur
Paul Johnson	Examineur
David Mitton	Examineur
Pascal Laugier	Directeur de Thèse
Djimédo Kondo	Président du jury

Université Pierre & Marie Curie - Paris 6
Bureau d'accueil, inscription des doctorants et base de données
Esc G, 2^{ème} étage
15 rue de l'école de médecine
75270-PARIS CEDEX 06

Tél. Secrétariat : 01 42 34 68 35
Fax : 01 42 34 68 40
Tél. pour les étudiants de A à EL : 01 42 34 69 54
Tél. pour les étudiants de EM à MON : 01 42 34 68 41
Tél. pour les étudiants de MOO à Z : 01 42 34 68 51
E-mail : scolarite.doctorat@upmc.fr

Résumé

La caractérisation du micro-endommagement et la compréhension de son rôle dans le métabolisme ou dans la fragilisation osseuse restent des challenges, tout particulièrement en raison de l'absence de techniques de mesures bien adaptées à son étude. Il apparaît donc nécessaire de développer de nouvelles techniques non-invasives pour détecter et suivre l'accumulation de micro-endommagement osseux, en particulier celui qui se manifeste par la présence de microfissures. L'objectif de la thèse est d'évaluer la sensibilité de la spectroscopie ultrasonore non-linéaire (NRUS) à l'accumulation du micro-endommagement osseux. La sensibilité et la reproductibilité de la technique NRUS ont tout d'abord été optimisées. Puis, deux groupes d'échantillons d'os cortical ont été prélevés sur des diaphyses fémorales humaines. Les spécimens du premier groupe ont été endommagés progressivement par fatigue en flexion 4-points. Le second groupe a subi un test de ténacité pour initier et propager de manière contrôlée une fissure unique. Nos résultats montrent que la non-linéarité mesurée des échantillons fatigués et fissurés augmente de manière significative après les étapes de fatigue ou le test de ténacité. De plus, nous observons une corrélation significative entre la variation relative du paramètre non-linéaire et l'augmentation de la densité de petites fissures (évaluée par microtomographie par rayonnement synchrotron). Enfin, le niveau de non-linéarité des spécimens fissurés est significativement corrélé à la longueur totale de la fissure. Ces résultats suggèrent que la technique NRUS optimisée est sensible à l'accumulation du micro-endommagement osseux.

Mots clés : *Acoustique non-linéaire, os, microfissure, biomécanique, histomorphométrie, microtomographie par rayonnement synchrotron (SR- μ CT)*

Abstract

Bone microdamage characterization as well as its involvement in bone metabolism or bone fragility remains a challenge, especially because no existing techniques are well suited to its measurement. Non invasive techniques for detecting and monitoring bone microcracks accumulation and propagation are thus highly desirable. The objective of this thesis was to evaluate the sensitivity of nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) measurements to the accumulation of damage in cortical bone by fatigue or by controlled crack propagation. First, NRUS method was optimized to achieve highly sensitive and reproducible bone nonlinearity measurements. Then, two groups of human cortical bone specimens were machined from the femoral mid-diaphysis. The first group was taken through a progressive fatigue protocol consisting of four steps of cyclic four-point bending. The second group was taken through a toughness protocol consisting of initiation and controlled propagation of a stable crack induced by 4-point bending mechanical loading. Our results evidenced a progressive increase of the nonlinear elastic parameter during fatigue testing or during toughness experiments. Moreover, the relative variation of nonlinear elasticity of the fatigued specimens was significantly related to the relative variation of the number density of small cracks assessed with micro-computed tomography, whereas in crack propagation experiments a significant relationship was found between the level of nonlinearity and total crack length. These results strongly suggest that NRUS measurements are sensitive to damage accumulation and bone non-linearity can be used as a marker of bone damage.

Keywords: *Nonlinear acoustics, bone, microcrack, biomechanics, histomorphometry, synchrotron radiation micro-computed tomography (SR- μ CT)*

TABLE DES MATIÈRES

Table des matières	3
Introduction	7
Chapitre 1. Le micro-endommagement de l'os cortical	11
1.1 Morphologie de l'endommagement osseux	12
1.1.1 Echelle nanoscopique	12
1.1.2 Echelle microscopique	14
1.2 Rôles du micro-endommagement osseux	17
1.2.1 Rôle dans le processus de fracture	18
1.2.2 Rôle dans le remodelage osseux	20
1.3 Biomécanique du micro-endommagement osseux : comment créer du micro-endommagement in-vitro ?	25
1.3.1 Fatigue : accumulation d'endommagement non localisé	25
1.3.2 Ténacité: initiation et propagation d'une microfissure localisée	30
1.4 Détection et visualisation du micro-endommagement osseux	36
1.4.1 Le « gold standard »: l'histomorphométrie	37
1.4.2 Les techniques émergentes	37
1.5 Conclusion	39
Bibliographie	41
Chapitre 2. l'acoustique non-linéaire non classique dans les solides : des roches aux métaux polycristallins	51
2.1 Les matériaux non-linéaires non classiques : des roches aux métaux	53
2.1.1 Les matériaux non-linéaires élastiques mésoscopiques (roches, matériaux granulaires et solides fissurés)	53
2.1.2 Les métaux mono et polycristallins (métaux et alliages métalliques)	56
2.1.3 Les matériaux à bandes de kinking	57
2.2 Elasticité hystérétique dynamique	58
2.2.1 Différents modèles phénoménologiques	58

2.2.2 <i>Un rapport indépendant de la déformation : le paramètre de Read</i>	63
2.3 Dépendance en température, en amplitude, en fréquence et en saturation. Des clés pour comprendre l'activation et la relaxation des mécanismes hystérétiques	66
2.3.1 <i>Dépendance en température</i>	67
2.3.2 <i>Dépendance en amplitude</i>	69
2.3.3 <i>Dépendance en fréquence : relaxation rapide et lente</i>	72
2.3.4 <i>Influence de l'humidité relative</i>	76
2.4 Conclusion	77
Bibliographie	79
Chapitre 3. Le contrôle non destructif par l'acoustique non-linéaire (technique) ...	87
3.1 Aperçus des techniques	88
3.1.1 <i>Génération d'harmoniques (harmonique, sous-harmonique, mélange de fréquence)</i>	88
3.1.2 <i>Résonance non-linéaire (NRUS, NRS et impact)</i>	93
3.1.3 <i>Techniques émergentes</i>	96
3.2 Localisation de microfissures	97
3.2.1 <i>Approche multimodale</i>	97
3.2.1 <i>Imagerie 2-D/3-D et focalisation par retournement temporel</i>	100
3.3 Evaluation de l'accumulation du micro-endommagement par acoustique non-linéaire	102
3.3.1 <i>Quelle(s) non-linéarité(s) mesurée(s) par la génération d'harmoniques ou le NWMS ?</i>	106
3.3.2 <i>Quelle(s) non-linéarité(s) mesurée(s) par le NRUS ?</i>	107
3.3.3 <i>Variation de β et α_f</i>	108
3.3.4 <i>Seuil, saturation, et variabilité de β et α_f</i>	109
3.3.5 <i>Comparaison entre les paramètres linéaires et non-linéaires</i>	109
3.3.6 <i>Paramètres non-linéaires vs endommagement non-localisé</i>	110
3.3.7 <i>Paramètres non-linéaires vs endommagement localisé</i>	112
3.4 Les techniques d'acoustique non-linéaire appliquées à l'os	112
3.5 Conclusion	115
Bibliographie	117
Chapitre 4. Optimisation de la spectroscopie par résonance ultrasonore non-	

linéaire pour les matériaux faiblement non-linéaire	125
4.1 Matériels et méthodes	126
4.1.1 <i>Les échantillons</i>	126
4.1.2 <i>Le protocole NRUS</i>	127
4.1.3 <i>La procédure de correction des données</i>	129
4.2 Résultats	133
4.3 Discussion	136
4.4 Conclusions et perspectives	139
Bibliographie	141
Chapitre 5. Evaluation de l'accumulation du micro-endommagement osseux par spectroscopie ultrasonore non-linéaire	143
5.1 Matériels et méthodes	144
5.1.1 <i>Préparation des échantillons et protocole de mesure</i>	144
5.1.2 <i>Mesures NRUS</i>	145
5.1.3 <i>Fatigue en flexion 4 points</i>	146
5.1.4 <i>Imagerie haute résolution par rayonnement synchrotron 3-D (SR-μCT)</i>	148
5.1.5 <i>Analyse des données</i>	151
5.2 Résultats	152
5.2.1 <i>Fatigue mécanique</i>	152
5.2.2 <i>Evaluation de la non-linéarité par NRUS</i>	152
5.2.3 <i>Caractéristiques de l'endommagement</i>	155
5.3 Discussion	158
5.3.1 <i>Analyse de la variation des paramètres non-linéaires acoustiques</i>	158
5.3.2 <i>Origine des non-linéarités non classiques de l'os cortical</i>	158
5.3.3 <i>Analyse du micro-endommagement osseux initial</i>	160
5.3.4 <i>Analyse du micro-endommagement osseux induit par fatigue</i>	161
5.4 Conclusions et perspectives	163
Bibliographie	164
Chapitre 6. Evaluation de la propagation d'une micro-fissure par spectroscopie ultrasonore non-linéaire	167
6.1 Matériels et méthodes	168
6.1.1 <i>Préparation des échantillons et protocole de mesure</i>	168

6.1.2 Mesures NRUS	169
6.1.3 Test de ténacité en flexion 4 points	171
6.1.4 Imagerie haute résolution par rayonnement synchrotron 3D (SR- μ CT)	174
6.1.5 Analyse des données	177
6.2 Résultats	177
6.2.1 Estimation de la longueur de la fissure	177
6.2.2 Ténacité de l'os cortical humain	178
6.2.3 Evaluation de la Non-linéarité par NRUS	179
6.3 Discussion	183
6.4 Conclusions et perspectives	187
Bibliographie	189
Conclusion	193
Annexe 1. (Chapitre 4) Quel modèle pour les matériaux polycristallins ?	195
Annexe 2. (Chapitre 5) Comparaison entre le module ultrasonore E_{US} et le module mécanique E_{meca}	201
Annexe 3. (Chapitre 5) Influence de la viscosité sur les tests de fatigue	207
Annexe 4. (Chapitre 5) Variation des paramètres acoustiques linéaires et non-linéaires au cours de l'endommagement	215
Listes des publications et communications orales.....	223

Introduction

Mis en évidence pour la première fois au début des années 1960 par Frost *et al*¹, le micro-endommagement, osseux et notamment la présence de microfissures, sont restés largement méconnus jusque dans les années 1990. Depuis, de nombreuses études ont soulevé leur importance, d'une part dans le processus de remodelage osseux et d'autre part dans la biomécanique de la fracture et la fragilisation de l'os. Cependant, leur rôle exact n'a toujours pas été clairement identifié. De plus, il n'existe actuellement aucune technique capable d'évaluer *in-vivo* le micro-endommagement osseux. L'étude des microfissures reste limitée à des expérimentations *in-vitro* sur des échantillons d'os issus de modèles animaux, de dons d'organe ou de biopsies de crêtes iliaques prélevées sur des patients. La technique de référence pour les études *in-vitro* reste l'histomorphométrie par microscopie optique (confocale et/ou à épifluorescence). Cette technique, fastidieuse, limitée à l'analyse de coupes 2-D prélevées dans le volume ciblé, manque souvent de portée statistique car le micro-endommagement osseux n'est pas toujours présent sur les coupes histologiques analysées. Pour pallier ces limitations, il apparaît opportun de développer de nouvelles techniques permettant l'évaluation quantitative du micro-endommagement de volumes osseux, non destructives, rapides et précises et qui pourraient s'avérer transposables *in-vivo*.

Ce développement reste à ce jour un défi que pourraient relever les techniques ultrasonores non-linéaires et en particulier la spectroscopie ultrasonore non-linéaire (NRUS). En effet, il a été démontré que la technique NRUS permet de détecter et suivre la création et l'accumulation de microfissures dans des matériaux aussi divers que le béton, les métaux et les composites. La transposition de cette technique à l'os a été menée avec succès par Muller *et al*^{2,3} au sein du Laboratoire d'Imagerie Paramétrique. Elle a ainsi mis en évidence grâce à

¹ Frost, H. (1960). "Presence of microscopic cracks in vivo in bone," Henry Ford Hosp Med Bull 8, 35.

² Muller, M., Sutin, A., Guyer, R., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2005). "Nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) applied to damage assessment in bone," Journal of the Acoustical Society of America 118, 3946-3952.

³ Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., Johnson, P., and Laugier, P. (2008). "Nonlinear ultrasound can detect accumulated damage in human bone," Journal of Biomechanics 41, 1062-1068.

des mesures NRUS que la non-linéarité acoustique de diaphyses fémorales humaines évoluait au cours d'une expérience de fatigue progressive. Cependant, ces études n'ont pas permis d'établir de lien opérationnel entre non-linéarité et caractéristiques de l'endommagement, aucune évaluation systématique du micro-endommagement n'ayant été réalisée en parallèle des mesures NRUS.

L'objectif principal des travaux présentés dans ce manuscrit consiste à : *i*) tester la sensibilité de la technique NRUS à l'accumulation du micro-endommagement de l'os cortical induit *in-vitro* par fatigue mécanique ou propagation contrôlée d'une fissure unique et *ii*) d'évaluer les relations qui peuvent exister entre les paramètres non-linéaires et les caractéristiques du micro-endommagement telles que la densité de microfissures, leur longueur ou leur orientation.

Le premier chapitre est consacré à la présentation du micro-endommagement de l'os cortical et à ce que l'on sait de son implication dans la biomécanique et la physiologie de l'os. Une attention particulière est portée aux principaux tests mécaniques (fatigue et ténacité) utilisés pour générer de manière plus ou moins contrôlée l'accumulation de microfissures.

Le second chapitre décrit les phénomènes associés à l'élasticité non-linéaire non classique (appelée aussi hystérétique) dans les solides. Ces phénomènes peuvent se rencontrer dans des matériaux aussi divers que les roches, les métaux et les matériaux endommagés. Bien que le comportement non-linéaire de l'os cortical soit encore largement méconnu, nous verrons qu'il possède certaines des caractéristiques propres aux matériaux non-linéaires hystérétiques. Ce chapitre fondamental servira d'assise tout au long du manuscrit pour l'interprétation des résultats expérimentaux.

Le troisième chapitre est une revue des techniques d'acoustique non-linéaire couramment utilisées ainsi que les techniques émergentes. En particulier, nous présentons une revue bibliographique exhaustive des expériences au cours desquelles la non-linéarité d'un matériau a été évaluée après endommagement progressif ou propagation d'une unique fissure.

Les trois derniers chapitres concernent les résultats des expériences menées au cours de cette étude. Le quatrième chapitre décrit la validation du dispositif expérimental et l'optimisation de la technique NRUS. Nous verrons en particulier que la procédure originale d'optimisation du protocole de mesure proposée est essentielle pour s'affranchir des effets sur les mesures des conditions environnementales. Elle permet d'atteindre ainsi une

reproductibilité et une sensibilité suffisantes pour mesurer de faibles non-linéarités (celle de l'os cortical est inférieure d'un ou deux ordres de grandeur à celle de matériaux plus classiquement évalués en NRUS) et d'en suivre les modifications fines lors de protocoles de fatigue. Le cinquième chapitre est consacré aux expériences de fatigue (accumulation progressive de micro-endommagement) et le sixième aux expériences de ténacité (propagation d'une unique fissure) menées sur des échantillons calibrés d'os cortical. Les tests NRUS sont menés chaque fois en parallèle des tests mécaniques. Les échantillons ont également fait l'objet d'évaluations par microtomographie par rayonnement synchrotron. .

Enfin en annexe, sont regroupés des résultats complémentaires issus des diverses expériences menées au cours de cette étude mais sans lien direct avec l'objectif principal de la thèse.

Chapitre 1.

LE MICRO-ENDOMMAGEMENT DE L'OS CORTICAL

A l'échelle macroscopique, l'os est divisé en os de type cortical (ou compact) et en os de type trabéculaire (ou spongieux) (Fig.1). Bien que les deux types d'os soient organisés en structure lamellaire de degré de minéralisation similaire, leur microstructure est différente. En effet, l'os cortical est moins poreux (<20%) que l'os trabéculaire (>80%). Pendant des années, les chercheurs se sont focalisés sur l'os trabéculaire, situé au cœur de l'os, pensant qu'il jouait un rôle déterminant dans la fracture, en particulier suite à une perte importante de masse osseuse comme c'est le cas dans l'ostéoporose. Or dans les faits, 80% des fractures ont lieu dans des sites osseux principalement composés d'os cortical comme la hanche (Kanis *et al.*, 2001). De plus, de nouvelles études tendent à montrer que le rôle de l'os trabéculaire dans le risque de fracture serait au mieux équivalent à celui de l'os cortical (Holzer *et al.*, 2009; Zebaze *et al.*, 2010). Partant de ce constat, nous avons choisi de nous concentrer sur l'os cortical, en étudiant une de ces caractéristiques les plus difficiles à mesurer : le micro-endommagement. En effet, aucune technique n'est capable d'évaluer *in-vivo* la quantité de micro-endommagement d'un os et les études *in-vitro* très fastidieuses manquent souvent de portée statistique significative (Martin *et al.*, 2007).

La présence de microfissures dans le tissu osseux (cortical et trabéculaire) est restée controversée jusque dans les années 1990 (Burr *et al.*, 1999) à l'inverse du micro-endommagement bien connu des ingénieurs et scientifiques travaillant dans le domaine des matériaux de construction (béton, acier, composites). En effet, le micro-endommagement est une caractéristique essentielle des structures soumises au chargement cyclique pour résister à la fracture et augmenter ainsi leur durée de vie. Actuellement, le débat continue autour de l'importance du rôle du micro-endommagement sur la biomécanique et la physiologie de l'os (Gupta and Zioupos, 2008; Allen and Burr, 2011; Burr, 2011).

Dans ce chapitre, nous décrirons d'abord la morphologie de l'endommagement osseux de l'échelle nanométrique à l'échelle mésoscopique puis nous essayerons de comprendre le rôle du micro-endommagement dans le remodelage osseux ainsi que dans le risque de

fracture. Enfin, nous verrons comment reproduire *in-vitro* l'endommagement de l'os cortical grâce aux tests de fatigue et de ténacité. Pour finir, nous ferons un état des lieux des techniques disponibles pour visualiser et quantifier le micro-endommagement osseux. Nous nous focaliserons en particulier sur les études réalisées dans l'os cortical. Pour de plus amples informations, voir entre autres, la revue de Donahue (Donahue and Galley, 2006).

1.1 Morphologie de l'endommagement osseux

Le micro-endommagement osseux de l'os cortical peut se séparer en deux catégories distinctes : l'endommagement diffus et les microfissures. Ils diffèrent par leur morphologie, la façon dont ils sont créés, leur processus de réparation ainsi que par leur localisation dans le tissu osseux.

1.1.1 Echelle nanoscopique

L'os est un matériau multi-échelle (Weiner and Wagner, 1998). A l'échelle nanoscopique, les unités nano-structurales de l'os sont les fibres de collagène minéralisées (Fig.1). Elles sont composées d'une phase organique de fibrilles de collagènes de type I quasi-ductiles (comparables à un polymère viscoélastique) entourées et infiltrées par des nanocristaux d'hydroxyapatite quasi-fragile (céramique élastique) constituant la phase minérale. Les fibrilles de collagène sont maintenues en cohésion par des protéines non-collagéniques (Nyman *et al.*, 2005; Gupta and Zioupos, 2008; Ritchie *et al.*, 2009).

Les fibres de collagène minéralisées composées de dizaines de fibrilles servent de briques de base à la construction de lamelles ayant une épaisseur d'environ 3-5 μ m (Weiner and Wagner, 1998). Une lamelle est composée d'une multitude de couches de fibres de collagène parallèles (i.e. sous-lamelle), chaque couche ayant une orientation différente par rapport à la couche précédente (Fig.1). Différentes variantes ont été proposées et sont désignées par les termes de *twisted plywood* (Giraud-Guille, 1988) ou *rotated plywood* (Weiner and Wagner, 1998) ou *helicoïdal plywood* (Wagermaier *et al.*, 2006) suivant l'orientation des différentes couches de collagène. Comme nous le verrons dans le paragraphe (1.3.2), cette structure périodique semble jouer un rôle important dans le processus de propagation des microfissures.

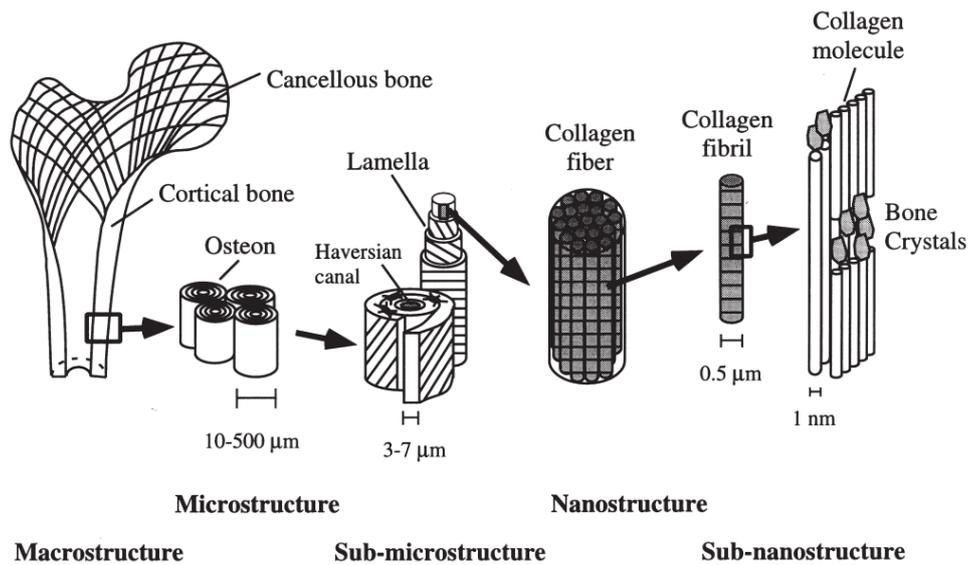


Figure 1 : Représentation schématique d’une portion de fémur de l’organe (os trabéculaire et cortical) à l’échelle nanométrique (la molécule de collagène et les cristaux d’hydroxyapatite) en passant par l’échelle microscopique (fibre de collagène minéralisée). Extrait de (Rho *et al.*, 1998)

A l’échelle nanoscopique, l’endommagement de la matrice osseuse n’est pas encore complètement élucidé. Certains pensent que l’endommagement passe par la rupture des liens entre les fibrilles via des protéines non-enzymatiques non-collagéniques telles que l’ostéopontine et les protéoglycanes (Fantner *et al.*, 2005)(Fig.2). Ces liens sont appelés « *sacrificial bonds* ». Ainsi, les protéines non collagéniques enroulées pourraient se rompre momentanément lors d’une contrainte de forte intensité. Elles se dérouleraient et s’allongeraient afin de dissiper l’énergie et maintenir l’intégrité des fibrilles de collagène. Ce mécanisme réversible participerait à la très bonne ténacité de la matrice osseuse lorsque le chargement dépasse la limite élastique.

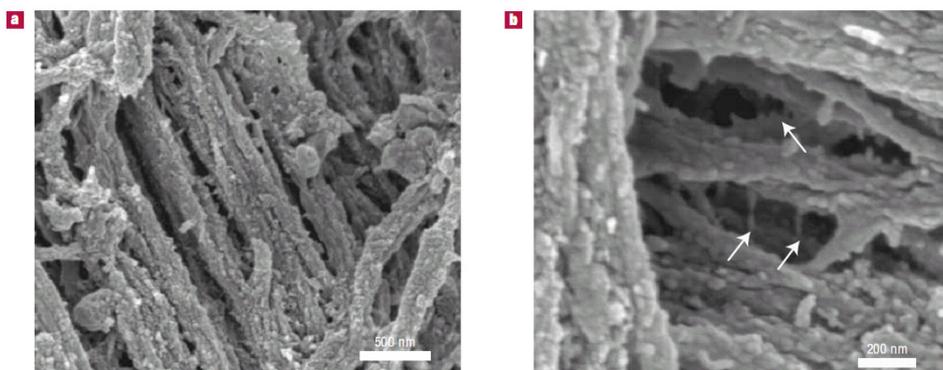


Figure 2 : Fibrilles de collagènes minéralisées interconnectées avec des protéines non-collagéniques servant de colle. a) Surface d’une fracture d’un os humain mettant à jour les fibrilles de collagènes minéralisées. b) Fibrilles maintenues ensemble par des filaments de colle (flèche). Images obtenues par microscopie électronique à balayage. Extrait de (Fantner *et al.*, 2005)

D'autres mécanismes prévenant la rupture des fibres de collagène pourraient cohabiter avec les *sacrificials bond* (Gupta and Zioupos, 2008). Ils auraient lieu au niveau des fibrilles et des fibres de collagène elles-mêmes, en cas de chargement local en tension et en cisaillement. Il s'agirait (1) de la rupture réversible des liaisons d'hydrogène entre les molécules de tropocollagène formant les fibrilles (Buehler, 2006), (2) de la rupture ou de la surabondance de pontages croisés [*en anglais* « *cross-link* »] enzymatiques ou non-enzymatiques reliant les fibrilles et les fibres entre-elles (Buehler, 2007; Saito and Marumo, 2010; Zimmermann *et al.*, 2011), ou bien (3) du frottement de type « *stick/slip* » entre les nano-cristaux (Tai *et al.*, 2006) entre les fibrilles et les nano-cristaux (Buehler, 2007) ou bien encore entre les fibrilles elles-mêmes (Gupta *et al.*, 2005).

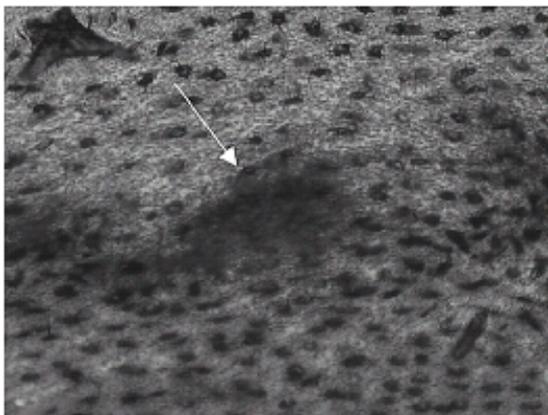
1.1.2 Echelle microscopique

A l'échelle microscopique, l'endommagement nanoscopique devient diffus tandis que l'endommagement microscopique correspond aux microfissures linéaires.

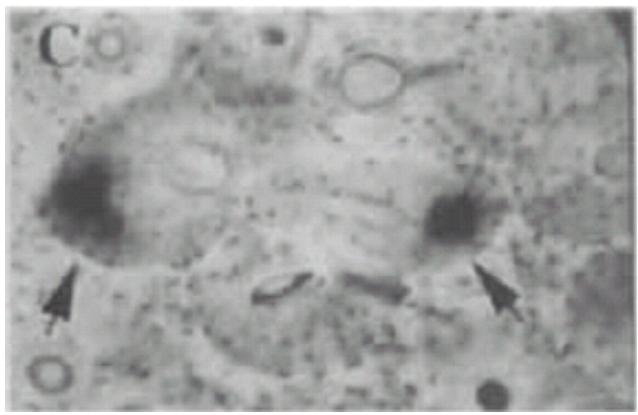
L'endommagement diffus (Fig.3) est mis en évidence par microscopie optique par des tâches de fluorochromes (fuchsine basique, calcéine verte ou xylénol orange...) de 0.1 à 1 $\mu\text{m}^2/\text{mm}^2$ (Boyce *et al.*, 1998; Diab and Vashishth, 2005; Diab *et al.*, 2006). Les fluorochromes se diffusent dans le tissu osseux dans une multitude de fissures submicrométriques (i.e décohésion des fibres de collagène). L'endommagement diffus se formerait principalement dans les zones sous tension (Boyce *et al.*, 1998; Diab and Vashishth, 2005) et dans les zones ductiles, moins minéralisées que le tissu interstitiel, c'est-à-dire dans les lamelles des ostéons.

Les microfissures linéaires sont matérialisées par deux plans séparés d'au maximum quelques micromètres dans le tissu osseux (Fig.4). Ils ont une structure en trois dimensions (3-D) que la plupart des auteurs définissent comme elliptique (O'Brien *et al.*, 2000; Mohsin *et al.*, 2006a). La largeur des microfissures (coupe transverse à l'axe des ostéons) est de l'ordre de 40-100 μm tandis que leur longueur (coupe longitudinale, c.-à-d. parallèle à l'axe des ostéons) peut s'étendre sur 300 à 500 μm (table II). Il est en effet plus facile à la microfissure de se propager le long des ostéons que d'essayer de les traverser. La ligne cimentante qui marque la limite entre les ostéons et le tissu interstitiel semble une barrière difficilement franchissable (O'Brien *et al.*, 2007). Notons que de nouveaux moyens d'investigation tels que la micro-tomographie par rayonnement synchrotron (SR- μCT) tendent à montrer que la

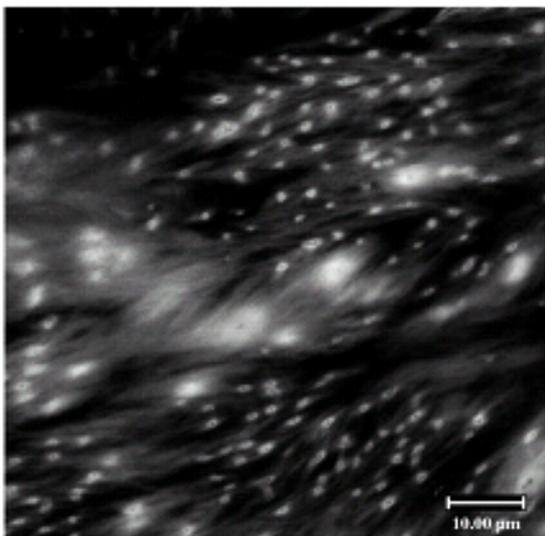
géométrie des microfissures est plus complexe qu'une ellipsoïde (Larrue *et al.*, 2011)(Fig.5). Les microfissures se forment préférentiellement dans le tissu interstitiel qui est plus minéralisé que les ostéons (Zioupos *et al.*, 1994; Schaffler *et al.*, 1995; Mohsin *et al.*, 2006b; O'Brien *et al.*, 2007). Elles seraient créées majoritairement en réponse à une mise en compression du tissu osseux (Boyce *et al.*, 1998; Reilly and Currey, 1999; Diab and Vashishth, 2005) lors des tests de fatigue. Enfin, les microfissures seraient le principal type d'endommagement chez les personnes âgées (Diab and Vashishth, 2007) qui présentent une densité de microfissures qui augmente avec l'âge (Schaffler *et al.*, 1995; Norman and Wang, 1997; Zioupos, 2001; Wasserman *et al.*, 2008).



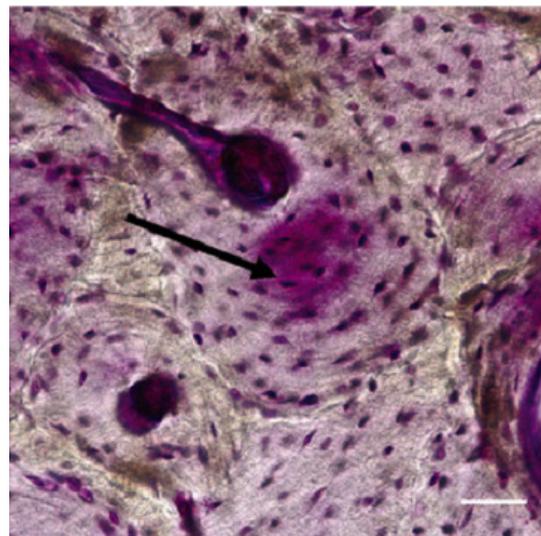
Section longitudinale. Microscopie à lumière blanche. Coloration à la Fuchsine. Pas d'échelle. Extrait de (Diab and Vashishth, 2005)



Section transverse. Microscopie à lumière blanche. Coloration à la Fuchsine. (échelle : champ de vue = 550µm). Extrait de (Boyce *et al.*, 1998)

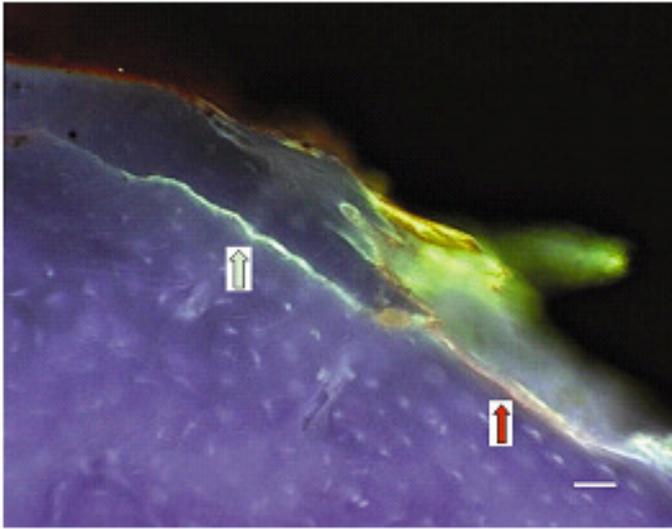


Section longitudinale. Microscopie à laser confocal. Coloration à la Fuchsine. Extrait de (Diab *et al.*, 2006)

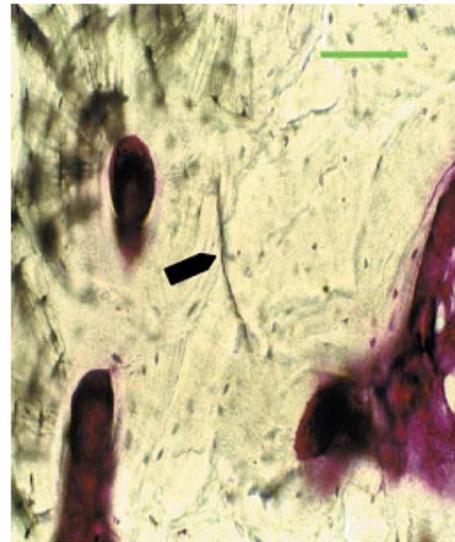


Section transverse. Microscopie à lumière blanche. Coloration à la Fuchsine. Trait = 50µm. Extrait de (Diab and Vashishth, 2007)

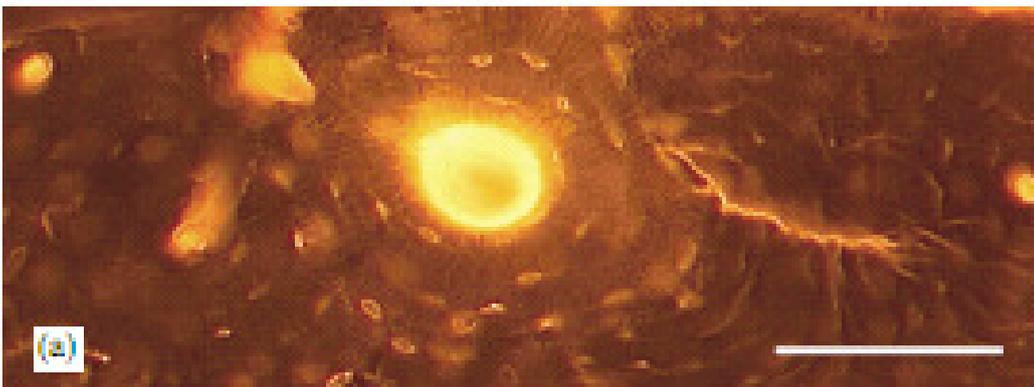
Figure 3 : Exemple d'endommagement diffus observé dans l'os cortical.



Section transverse. Double coloration (calcéine verte et alizarine rouge). Microscopie à épifluorescence. Trait=50µm. Extrait de (Lee *et al.*, 2000b)



Section transverse. Microscopie à lumière blanche. Coloration à la Fuchsine. Trait=50µm. Extrait de (Lee *et al.*, 2003)



Section transverse. Microscopie à épifluorescence. Coloration au xylénol orange. La microfissure est stoppée par la ligne cémentante. Trait=100µm. Extrait de (O'Brien *et al.*, 2003)

Figure 4 : Exemple de microfissures observées dans l'os cortical.

Les caractéristiques du micro-endommagement de l'os cortical telles que longueur (Cr.Le) et densité (Cr.Dn) de microfissures et surface du diffus (Df.A)) mesurées sur des échantillons n'ayant pas subi de fatigue mécanique, sont regroupées dans la table II du paragraphe 3.1.1.

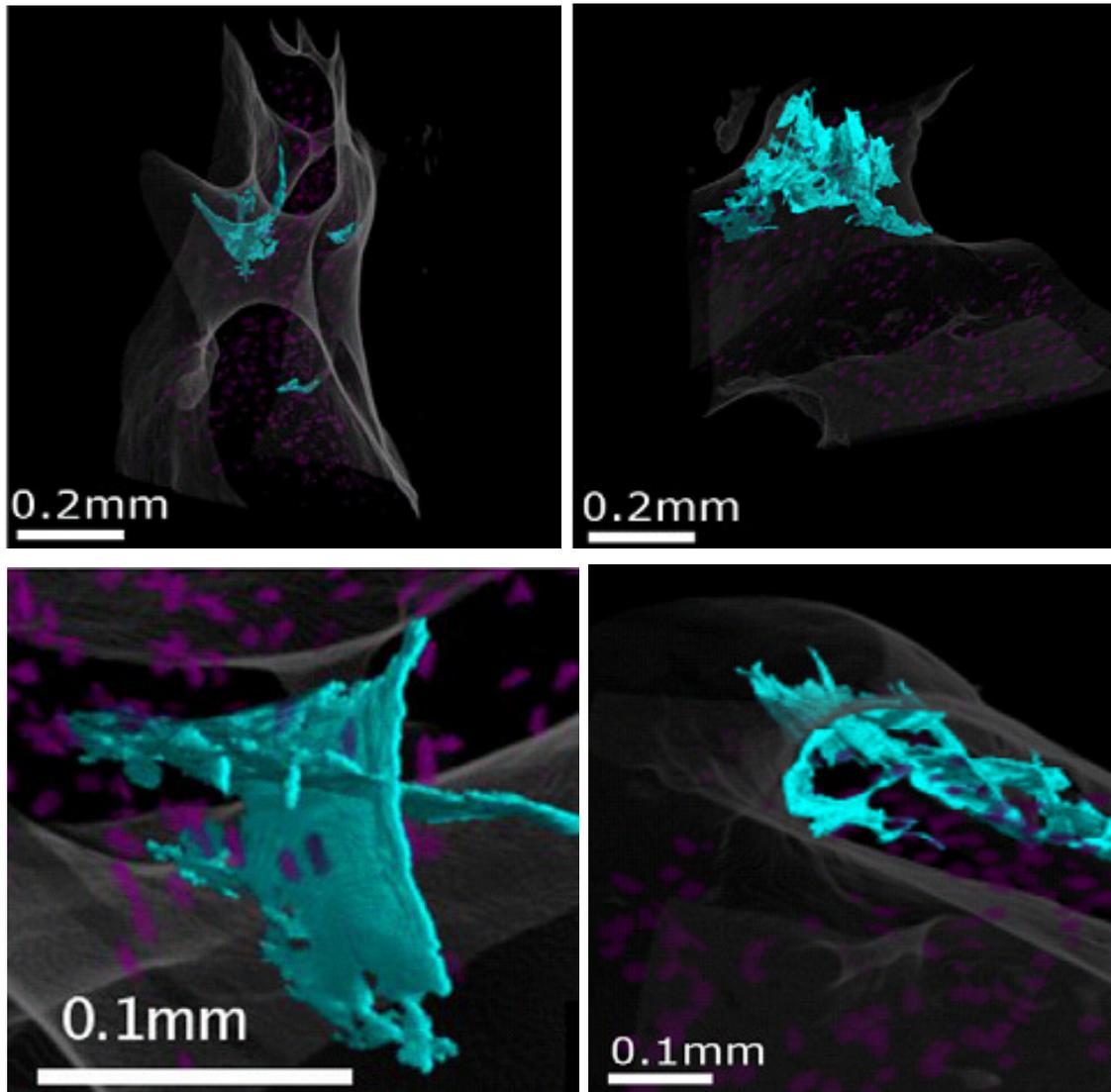


Figure 5 : Visualisation 3-D de microfissures obtenues par tomographie à rayonnement synchrotron. Os trabéculaire. (Extrait de (Larrue *et al.*, 2011))

1.2 Rôles du micro-endommagement osseux

Le micro-endommagement osseux joue un double rôle, 1) biomécanique lors des processus qui mènent à la fracture et 2) physiologique à travers le remodelage osseux. Son rôle physiologique est de moins en moins discutable tandis que son rôle dans l'augmentation du risque de fracture *in-vivo* n'a toujours pas été clairement établi. De récentes revues sur le sujet donnent un aperçu pertinent sur l'état des connaissances actuelles et sur ce qui reste encore inconnu (Gupta and Zioupos, 2008; Chapurlat and Delmas, 2009; Burr, 2011).

1.2.1 Rôle dans le processus de fracture

D'après Gupta et Zioupos (Gupta and Zioupos, 2008), il existe un consensus sur les différentes étapes menant à la fracture de l'os. Par contre, l'importance relative de ces différentes étapes n'est pas clairement établie. Ces étapes sont généralement définies par la courbe contrainte/déformation qui mène à la rupture de l'os. Celle-ci débute par une phase linéaire réversible (i.e phase I) puis la contrainte ou la déformation dépasse la limite élastique pour atteindre la phase plastique (i.e. phase II) pendant laquelle l'os se déforme de manière irréversible, avant d'atteindre la phase d'écrouissage (i.e phase III) qui survient juste avant la rupture du matériau (Fig.6). La formation et l'accumulation du micro-endommagement peut avoir lieu lors de chacune des phases :

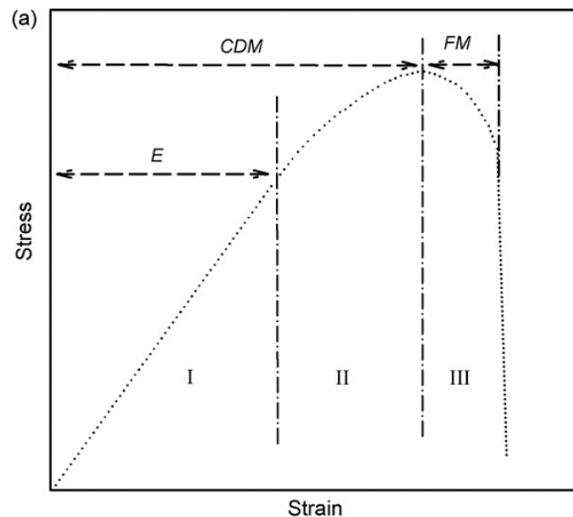


Figure 6 : Présentation des trois phases successives de la courbe contrainte/déformation menant à la rupture de l'os. Phase I : élastique (E) ; Phase II : plastique [en anglais « *continuum damage mechanics range (CDM)* »] ; Phase III : mécanique de la fracture (FM). Extrait de (Gupta and Zioupos, 2008)

- *Phase I*, l'os est susceptible de subir un chargement cyclique compris entre des bornes inférieures à sa limite élastique. La fatigue cyclique de l'os pourrait être à l'origine de la création d'un micro-endommagement ainsi que le prévoit la résistance des matériaux (Lemaitre and Dufailly, 1987).
- *Phase II*, l'os absorbe le surplus d'énergie apporté par la contrainte/déformation mécanique en favorisant la formation de microfissures et d'endommagement diffus au détriment de sa rigidité et de sa résistance à la rupture. Plus l'os est ductile, plus cette phase est longue, contrairement aux matériaux fragiles.

- *Phase III*, l'os tente de réduire le front de propagation de la fissure principale en créant de nouvelles microfissures adjacentes à la propagation de la fissure. Ces nouvelles microfissures dissipent l'énergie et ralentissent la propagation de la fissure principale. Cette phase est directement liée à la ténacité de l'os qui est d'autant plus longue que le matériau est ductile.

Cette vision simplifiée de la mécanique de la fracture masque l'hétérogénéité des types de fractures osseuses dont la diversité dépend du processus à l'origine de la rupture. Ainsi certaines fractures proviennent d'un chargement mécanique, qui peut être 1) **excessif** (supérieur à un seuil de contrainte ou d'endommagement comme dans le cas d'une chute, d'un choc ou d'un accident), 2) **prolongé** (i.e déformation permanente par fluage), ou 3) **répétitif** (i.e. fatigue) (McBryde, 1975; Matheson *et al.*, 1987). D'autres fractures survenant sans traumatisme majeur sont le résultat d'une maladie (i.e ostéoporose) (Kanis *et al.*, 2001), du vieillissement (Hui *et al.*, 1988; Cummings *et al.*, 1990), d'un traitement pharmaceutique (i.e. traitement aux biphosphonates) (Shane *et al.*, 2010)... Quelque soit le mécanisme de la fracture, le micro-endommagement de l'os fait partie intégrante du processus. Il aurait ainsi deux effets opposés: 1) l'accumulation de micro-endommagement **détériorerait les propriétés mécaniques** de l'os (Burr *et al.*, 1998) tandis que 2) la création de microfissures **augmenterait la résistance à la fracture** en favorisant la dissipation de l'énergie apportée par la contrainte/déformation exercée sur l'os (Vashishth *et al.*, 1997; Vashishth, 2004).

Cependant, le *rôle négatif* du micro-endommagement dans le processus de fracture est encore sujet à débat (Burr, 2011). En effet, bien que des études *in-vitro* aient identifié que l'accumulation du micro-endommagement osseux diminue la rigidité de l'os (Boyce *et al.*, 1998; Yeni and Fyhrie, 2002; O'Brien *et al.*, 2003; Sobelman *et al.*, 2004; Diab and Vashishth, 2005; O'Brien *et al.*, 2007), la contrainte critique avant plastification (Yeni and Fyhrie, 2002), la contrainte maximale à la rupture (Yeni and Fyhrie, 2002; Danova *et al.*, 2003) et la ténacité (Yeni and Fyhrie, 2002; Diab and Vashishth, 2005), le niveau d'endommagement atteint *in-vitro* a rarement été mesuré *in-vivo* (Burr, 2011). D'autre part, il est possible que l'endommagement initié *in-vitro* possède des caractéristiques biomécaniques et structurelles différentes de celles créées *in-vivo*.

Pour conclure, le rôle du micro-endommagement osseux dans le processus de fracture n'est toujours pas clairement élucidé. Il pourrait cependant être à l'origine des fractures spontanées pour lesquelles aucune explication satisfaisante n'existe actuellement (Shane *et*

al., 2010). La visualisation et/ou la quantification du micro-endommagement osseux pourrait permettre de répondre à cette question. En attendant, le remodelage osseux et ses désordres ont permis d'identifier le rôle physiologique des microfissures et d'appréhender indirectement leur rôle biomécanique.

1.2.2 Rôle dans le remodelage osseux

Le remodelage osseux est un processus naturel qui a lieu chez les êtres vertébrés ayant une croissance (modelage) osseuse limitée dans le temps (humains, chiens, bovins, mais pas chez la souris). Ce processus permet le renouvellement de l'os tout au long de la vie tandis que le modelage compense la perte osseuse interne au niveau de l'endoste, par apposition périostée d'os nouvellement formé qui a pour conséquence d'augmenter le diamètre externe de l'os (Fig.7).

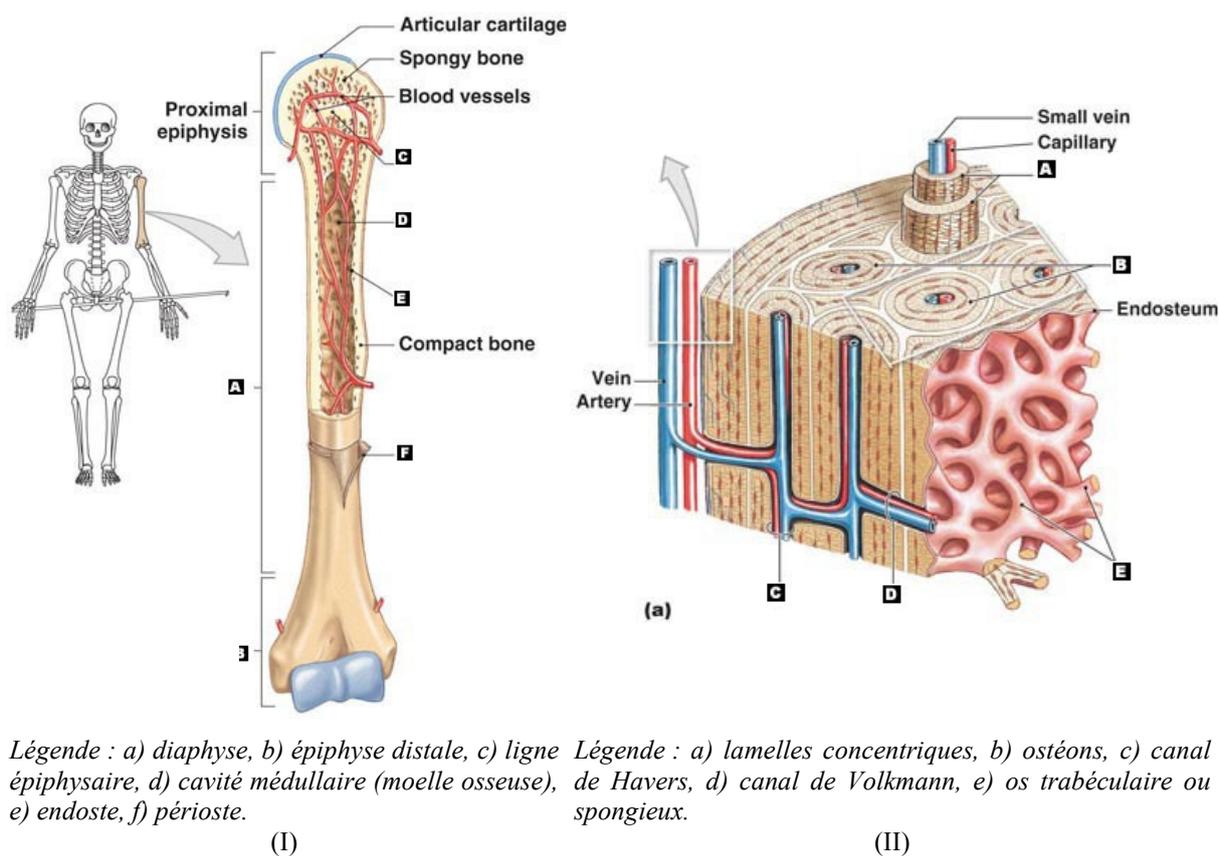


Figure 7 : Description anatomique de l'os humain. (I) Description anatomique d'un os long : l'humerus ; (II) Description anatomique de l'os cortical (compact).

Source : http://wps.aw.com/bc_martini_eap_5/108/27708/7093400.cw/index.html

Le processus de remodelage est géré par des unités fonctionnelles de remodelage constituées de cellules de types ostéoclastique et ostéoblastique dont les activités

métaboliques sont couplées dans le temps et l'espace (Fig. 8). Les ostéoclastes participent à la résorption de la matrice osseuse par formation de porosité lacunaire ou de cavité de résorption tandis que les ostéoblastes qui interviennent après les ostéoclastes, produisent des fibres de collagène de type I qui seront ensuite minéralisées. Dans l'os cortical, l'application des fibres de collagène se fait par couches successives et concentriques autour d'un canal pour former une unité structurale appelée ostéon qui est séparée du reste de la matrice par une ligne cimentante. Ainsi l'ostéon a plutôt une forme tubulaire, avec un canal de Havers d'environ 50µm de diamètre, en son centre. Les canaux de Havers sont reliés entre eux par des plus petits canaux transversaux, appelés canaux de Volkmann. Ces canaux permettent la circulation des nutriments, des protéines et des cellules nécessaires au bon fonctionnement métabolique de l'os (Fig.7).

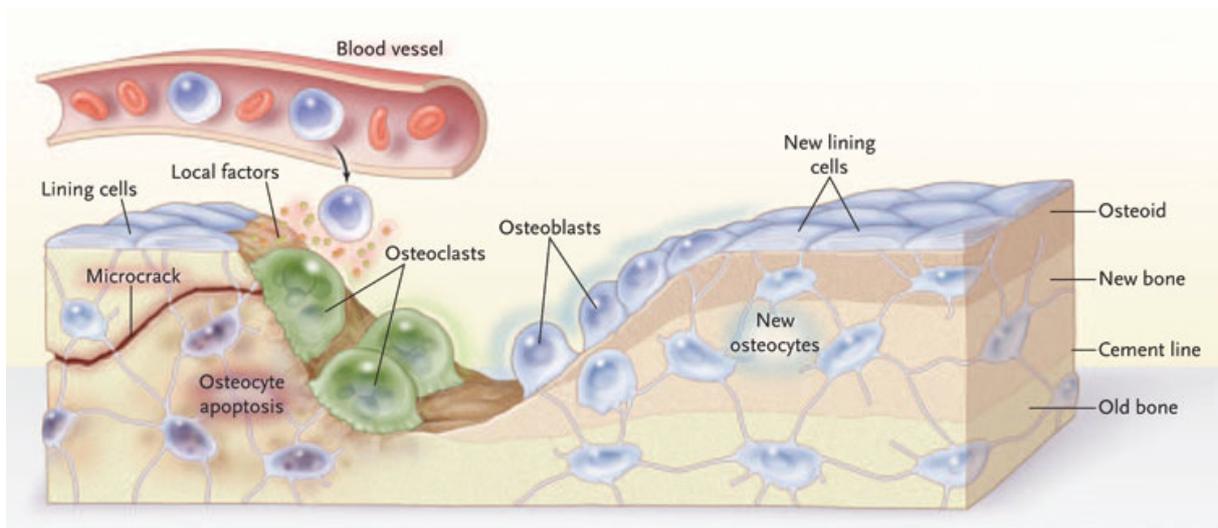


Figure 8 : Cycle du remodelage osseux. Extrait de (Seeman and Delmas, 2006)

Il existe deux types de remodelage osseux : le remodelage stochastique qui participe au maintien de l'homéostasie minérale, et le remodelage ciblé. Le remodelage ciblé est stimulé, entre autres, par la présence de micro-endommagement osseux. Cette hypothèse fut émise pour la première fois par Frost (Frost, 1960) et fut confirmée plus tard par des expériences montrant un remodelage intense dans les os fatigués mécaniquement (Burr *et al.*, 1985; Mori and Burr, 1993; Bentolila *et al.*, 1998). Il semble que le stimulus viendrait de la mort cellulaire (apoptose) des ostéocytes au voisinage de la microfissure (Verborgt *et al.*, 2000; Cardoso *et al.*, 2009) associée aux ostéocytes « vivants » plus éloignés qui apporteraient la protéine (RANKL) nécessaire à la différenciation et l'activation des ostéoclastes (Mulcahy *et al.*, 2011; Kennedy *et al.*, 2012). Notons qu'une étude récente (Herman *et al.*, 2010) vient de montrer que l'endommagement diffus ne stimulerait pas de

remodelage ciblé, les ostéocytes restant intègres. Les autres mécanismes suspectés de promouvoir localement le renouvellement de l'os sont liés au phénomène de mécano-transduction causé par l'écoulement de fluide dans la matrice osseuse (Burger and Klein-Nulend, 1999; Han *et al.*, 2004). Grâce au remodelage, le tissu autour des microfissures est résorbé et un nouveau tissu vient combler l'emplacement de la fissure. Ce mécanisme permettrait de contenir la densité de microfissures au sein du squelette. Le remodelage osseux ciblé par la présence de microfissure représenterait 30% de l'ensemble du remodelage osseux car il y aurait un ratio constant entre la densité de microfissure et la densité de cavité de résorption (Chapurlat and Delmas, 2009). Ainsi, les résultats de ces multiples expériences permettent de rejeter l'hypothèse selon laquelle les microfissures surviennent a posteriori, à cause de la concentration de contraintes engendrée par la présence de la cavité de résorption (Burr, 2011).

Le remodelage ciblé aurait lieu majoritairement dans l'os cortical et jouerait donc un rôle moins important dans l'os trabéculaire (Martin, 2002) tandis que le remodelage stochastique de l'os trabéculaire serait plus rapide que celui de l'os cortical (Allen and Burr, 2011).

Il existe principalement deux types de déséquilibre : 1) la sur-résorption d'os ou 2) la sous-résorption d'os. Le premier déséquilibre est naturel, il est lié à la ménopause et de manière plus générale à l'âge. Ainsi après la ménopause, les importants changements hormonaux peuvent engendrer un dérèglement des unités de remodelage qui résorbent plus d'os qu'elles n'en forment. Le déséquilibre de la balance osseuse est à l'origine de la diminution de la densité minérale osseuse (DMO) [en anglais « Bone Mineral Density » BMD] (Zebaze *et al.*, 2010). La baisse de la DMO est la principale caractéristique de l'ostéoporose touchant une femme de plus de 50 ans sur deux. La sur-résorption de la matrice osseuse lors de l'ostéoporose devrait contribuer à la réduction de la densité de microfissures présentes dans le squelette tout comme l'augmentation du remodelage osseux avec l'âge. Or c'est plutôt l'inverse qui est observé, avec une augmentation de la densité de microfissures (dans la partie corticale (Schaffler *et al.*, 1995; Norman and Wang, 1997; Zioupos, 2001; Diab and Vashishth, 2007) ou trabéculaire (Mori *et al.*, 1997) du fémur). C'est moins clair dans la vertèbre, même si une étude récente (Arlot *et al.*, 2008) montre clairement un effet de l'âge. Enfin les rares études réalisées sur des biopsies humaines d'os de crête iliaque prélevées *in-vivo* montrent qu'il n'y a pas d'effet de l'âge sur la densité de microfissure (Chapurlat *et al.*,

2007; Stepan *et al.*, 2007). Ces disparités pourraient s'expliquer par le champ de contraintes (ou déformations) naturelles ainsi que par le taux de remodelage (e.g. 1-2%/an dans les os longs contre 15-20%/an dans les côtes) qui diffèrent suivant les sites anatomiques (Allen and Burr, 2011). Il semble cependant que les capacités de réparation de l'os diminuent avec l'âge (Diab *et al.*, 2006; Diab and Vashishth, 2007; Waldorff *et al.*, 2007). La diminution du nombre d'ostéocytes actifs lors du vieillissement pourrait être la cause de l'accumulation du micro-endommagement osseux (Vashishth *et al.*, 2000).

Le second déséquilibre est thérapeutique, il est lié au traitement de l'ostéoporose par des médicaments dont la formulation contient des agents anti-résorption appartenant essentiellement à la famille des bisphosphonates (BP) (e.g. risedronate, incadronate, alendronate...). Les BP réduisent très fortement l'activité des ostéoclastes ce qui a pour principale conséquence de limiter la résorption osseuse. L'activité des ostéoblastes n'est pas pour autant supprimée ce qui favorise en plus la formation de tissu osseux et donc l'augmentation de la densité minérale osseuse. Il semblerait que les BP agissent indifféremment sur le remodelage ciblé ou aléatoire (Burr, 2002) en empêchant l'apoptose des ostéocytes (Plotkin *et al.*, 1999; Follet *et al.*, 2007) qui permettent le recrutement localisé d'unités fonctionnelles de remodelage. Grâce à l'accroissement de la DMO, les risques de fracture sont largement réduits (Russell *et al.*, 2008; Allen and Burr, 2011) bien que les BP empêchent en contrepartie la réparation des microfissures. Quelques études ont tenté de comprendre le couplage entre l'action des BP et l'augmentation des microfissures (Table I).

Les résultats font pour le moment l'objet de controverses. Ainsi, l'augmentation de microfissures ne serait pas observée systématiquement. Elle dépendrait de la posologie (dose et durée) et du site anatomique, et n'aurait lieu qu'au début du traitement (la première année (Allen *et al.*, 2008)). Notons qu'actuellement nous ne sommes toujours pas en mesure d'affirmer que des microfissures s'accumulent bien dans le squelette humain lors d'un traitement au BP (Chapurlat *et al.*, 2007) sauf dans le cas où la densité de microfissures est ajustée à l'âge, la DMO et la prévalence de fracture (Stepan *et al.*, 2007). De même les propriétés mécaniques normalisées par la DMO ne seraient pas toujours affectées lors d'un traitement à dose clinique ou faible, voire presque jamais dans le cas de l'os cortical (Smith *et al.*, 2003; Burr *et al.*, 2009; Tang *et al.*, 2009). Ainsi la contrainte à la rupture reste inchangée la plupart du temps (Komatsubara *et al.*, 2003; Allen *et al.*, 2006; Allen and Burr, 2007), la rigidité augmente parfois (Komatsubara *et al.*, 2004) tandis que la ténacité peut diminuer (Komatsubara *et al.*, 2003; Allen and Burr, 2007) quelquefois pendant toute la durée du

traitement aux BP (Allen *et al.*, 2008). La corrélation entre la présence des microfissures et la variation des propriétés mécaniques n'est donc toujours pas clairement établie. Les BP pourraient modifier directement les propriétés mécaniques sans que le rôle des microfissures ne soit déterminant. Les BP pourraient aussi contribuer à rendre l'os plus fragile (diminution de la rigidité et de la ténacité) à cause de l'accumulation des produits terminaux de la glycation [en anglais « Advanced Glycation end-products » (AGE)] dans la matrice de collagène (Tang *et al.*, 2009; Saito and Marumo, 2010).

Site anatomique	Type	BP + durée	μ fissure	Propriétés mécaniques	ref
crête iliaque	H trab	ALN, RIS, PAM > 3ans	==	-	(Chapurlat <i>et al.</i> , 2007)
crête iliaque	H trab	ALN (5ans)	x1.5	-	(Stepan <i>et al.</i> , 2007)
Vertèbre lombaire	C trab	RIS et ALN (1an)	x2.9-3.7	E++ ; Kc --	(Allen <i>et al.</i> , 2006)
Vertèbre lombaire	C trab	ALN (3ans)	x3	Kc--	(Allen and Burr, 2007)
Vertèbre lombaire	C trab	INC (3ans)	X2.9	Kc -- ; Smax--	(Komatsubara <i>et al.</i> , 2003)
Vertèbre lombaire	P trab	ALN (2ans)	-	E== ; Smax==	(Balena <i>et al.</i> , 1993)
Côte	C cort	INC (3ans)	X1.6	E++ ; Kc == ; Smax++	(Komatsubara <i>et al.</i> , 2004)
Tibia	C cort	RIS et ALN (1an)	-	E== ; Kc == ; Smax==	(Tang <i>et al.</i> , 2009)
Tête fémorale	P cort	IBA (16mois)	-	E== ; Kc == ; Smax==	(Smith <i>et al.</i> , 2003)
Diaphyse fémorale	C cort	ALN (1 et 3ans)	-	E== ; Kc == ; Smax==	(Burr <i>et al.</i> , 2009)
Diaphyse fémorale et Tête fémorale	P cort	ALN (2ans)	-	E== ; Smax==	(Balena <i>et al.</i> , 1993)

H = humain ; C = chien ; P = Primate ; trab = trabéculaire ; cort = cortical ; RIS = Risenodrate ; ALN = Alendronate ; INC = Incadronate ; IBA = Ibandronate ; PAM = Pamidronate ; E = élasticité ; Kc = ténacité ; Smax = contrainte à la rupture. Les signes ++, == et -- signifient respectivement augmentation, stabilité et diminution du paramètre. Les études faites sur les rongeurs (e.g. rats et souris) ne sont pas reportées car leur structure osseuse n'est pas similaire aux primates et au chien (i.e. les os des rongeurs n'ont pas de structure haversienne (pas d'ostéons)). Seuls les résultats obtenus après l'administration d'une dose clinique ou faible de BP sont inscrites dans le tableau.

Table I : Effet du traitement aux bisphosphonates sur l'augmentation des microfissures et le changement des propriétés mécaniques suivant le site anatomiques et le type d'os.

Pour résumer, le remodelage osseux peut être stimulé par la présence de microfissures qui active les unités fonctionnelles de remodelage, qui ciblent les microfissures, en particulier dans l'os cortical. Le blocage du remodelage lors d'un traitement aux bisphosphonates pourrait résulter dans l'augmentation de la densité de microfissures de certains sites anatomiques. Par contre, bien qu'il soit désormais acquis que l'accumulation de microfissures *in-vitro* augmente la fragilité de l'os, il n'a pas été encore clairement établi que ces microfissures favoriseraient les fractures *in-vivo*. En revanche, il est dorénavant établi que les bisphosphonates modifient indirectement la ténacité de l'os *in-vivo*.

1.3 Biomécanique du micro-endommagement osseux : comment créer du micro-endommagement *in-vitro* ?

La biomécanique du micro-endommagement osseux a essentiellement été étudiée *in-vitro* en faisant appel à des tests mécaniques couramment utilisés dans le domaine de la résistance des matériaux, tels que les tests quasistatiques, les tests de fatigue et les tests de ténacité.

Dans cette partie, nous allons décrire plus particulièrement les résultats obtenus grâce aux tests de fatigue qui permettent l'accumulation d'un endommagement non localisé supposé similaire à celui créé *in-vivo*. Puis nous décrirons les expériences ayant fait intervenir un test de ténacité dans le but d'étudier l'énergie ou la contrainte nécessaire pour initier et propager une microfissure isolée. Nous nous focaliserons uniquement sur l'os cortical.

1.3.1 Fatigue : accumulation d'endommagement non localisé

Les tests de fatigue mécanique consistent à exercer une contrainte σ (déformation ε) sur un échantillon d'os (généralement calibré (Diab and Vashishth, 2005)), parfois sur un os entier (Burr *et al.*, 1998) de manière répétée tout en essayant de rester dans le régime élastique (phase I de la courbe Fig.6). La fréquence de cyclage des échantillons d'os est importante car l'os est un matériau viscoélastique, donc sensible au taux de déformation (Zioupos *et al.*, 2008). Elle est habituellement comprise entre 1Hz et 10Hz, 2Hz étant la fréquence la plus utilisée car elle correspond à la fréquence de la marche. La déformation maximale (ε_{\max}) appliquée à l'échantillon d'os dépend du type de test mécanique (i.e tension, compression, flexion, torsion) mais reste généralement inférieure ou égale à $5 \cdot 10^{-6}$, soit $5000\mu\varepsilon$. En effet, il a été montré que $5000\mu\varepsilon$ correspond à la déformation ε_{\max} que peut subir un os du métatarse (i.e. du pied) quand une personne saute depuis une hauteur d'un mètre, tandis que courir sur une surface plate ou en descente engendrerait une déformation ε_{\max} du tibia respectivement de $1500\mu\varepsilon$ et $2000\mu\varepsilon$ (Milgrom *et al.*, 2002).

Lors des tests de fatigue, le paramètre biomécanique le plus couramment mesuré est le module élastique E de l'éprouvette. L'élasticité est évaluée par différents types de modules tels que (1) le module sécant (E_{sec}), qui correspond à la droite passant entre les deux extrema d'un cycle de chargement ($E_{sec} = (\sigma_{\min} - \sigma_{\max}) / (\varepsilon_{\min} - \varepsilon_{\max})$) (Schaffler *et al.*, 1989; 1990; Gibson *et al.*, 1995; Pattin *et al.*, 1996; Zioupos *et al.*, 1996; Fleck and Eifler, 2003; Cotton *et al.*,

2005; Winwood *et al.*, 2006), (2) le module à la charge (E_{load}) qui correspond à la portion linéaire de la courbe contrainte/déformation (Gibson *et al.*, 1995; Jepsen and Davy, 1997; Burr *et al.*, 1998; Pidaparti *et al.*, 2000; Akkus *et al.*, 2003) ou (3) le module issu de la théorie linéaire des poutres (E_{LEBT}) qui ne tient pas compte de la déformation résiduelle ($E_{LEBT} = \sigma_{max} / \varepsilon_{max}$) (Boyce *et al.*, 1998; Danova *et al.*, 2003; Diab and Vashishth, 2005; Diab *et al.*, 2006; Landrigan and Roeder, 2009). Le module E_{LEBT} est le module le plus souvent calculé en flexion 3 ou 4 points. Lors des essais de fatigue, le module élastique peut diminuer entre 10% et 60% avant que l'éprouvette d'os cortical ne se fracture (Pattin *et al.*, 1996). La réduction du module dépend de la déformation ε_{max} , du type de test mécanique (compression ou tension) et de la fréquence du cyclage. Dans la plupart des expériences, la baisse du module sert à déterminer directement le niveau de l'endommagement osseux (Zioupos *et al.*, 1994). A notre connaissance, relativement peu d'études (nous en avons dénombré 14 *in-vitro*, dont seulement 5 sur des échantillons humains) ont tenté de qualifier et quantifier le micro-endommagement (les microfissures et l'endommagement diffus) effectivement créé lors des tests de fatigue sur des éprouvettes d'os cortical. Nous les avons regroupées dans la table II. Les résultats sont partagés. En effet, dans certaines études, la longueur (Cr.Le) et/ou la densité (Cr.Dn) de microfissures et/ou la surface de l'endommagement diffus (Df.A) augmentent légèrement après les essais de fatigue (Schaffler *et al.*, 1989; Burr *et al.*, 1998; Sobelman *et al.*, 2004; Landrigan and Roeder, 2009) tandis que dans d'autres, l'augmentation est clairement significative (Boyce *et al.*, 1998; O'Brien *et al.*, 2003; Diab and Vashishth, 2005; O'Brien *et al.*, 2007; Landrigan *et al.*, 2011). La disparité des valeurs est liée au test de fatigue (en particulier le choix et la valeur du critère d'arrêt), à la structure anatomique observée (Norman and Wang, 1997), à la direction de la coupe (longitudinal ou transverse) (O'Brien *et al.*, 2003), à l'âge du sujet (Diab *et al.*, 2006), à la technique de visualisation de l'endommagement (Huja *et al.*, 1999; Lee *et al.*, 2000a; Lee *et al.*, 2000b) et très certainement à la surface totale de coupes explorées dont dépend la significativité des résultats (Martin *et al.*, 2007).

Quelques études ont montré une évolution du module élastique en trois phases (Fig.9) lors de tests de fatigue (Boyce *et al.*, 1998; Sobelman *et al.*, 2004; Diab and Vashishth, 2005) typique des matériaux composites renforcés de fibres (Reifsnider and Jamison, 1982). Partant de ce constat, O'Brien a montré que la variation de la densité Dn.Cr est qualitativement similaire à celle du module élastique (O'Brien *et al.*, 2007). Ainsi lors de la phase I, l'accumulation de l'endommagement se ferait essentiellement sous forme de nouvelles microfissures courtes (O'Brien *et al.*, 2003; 2007) avec en parallèle une saturation de

l'endommagement diffus (Diab and Vashishth, 2005). Puis lors de la phase II, l'os ne créerait plus de nouvelles microfissures tandis que certaines déjà présentes continueraient à grandir, jusqu'à être stoppées par les hétérogénéités de la matrice osseuse telles que les lignes cémentantes ou les ostéocytes (O'Brien *et al.*, 2003). Enfin, lors de la phase III, de nouvelles microfissures seraient à nouveau créées, certainement pour contenir et ralentir la propagation critique de quelques microfissures conduisant à la rupture (Vashishth, 2004; Diab and Vashishth, 2005). Les études d'O'Brien confirment qu'une microfissure n'est pas le résultat de la coalescence de petites microfissures mais bien la propagation d'une unique microfissure.

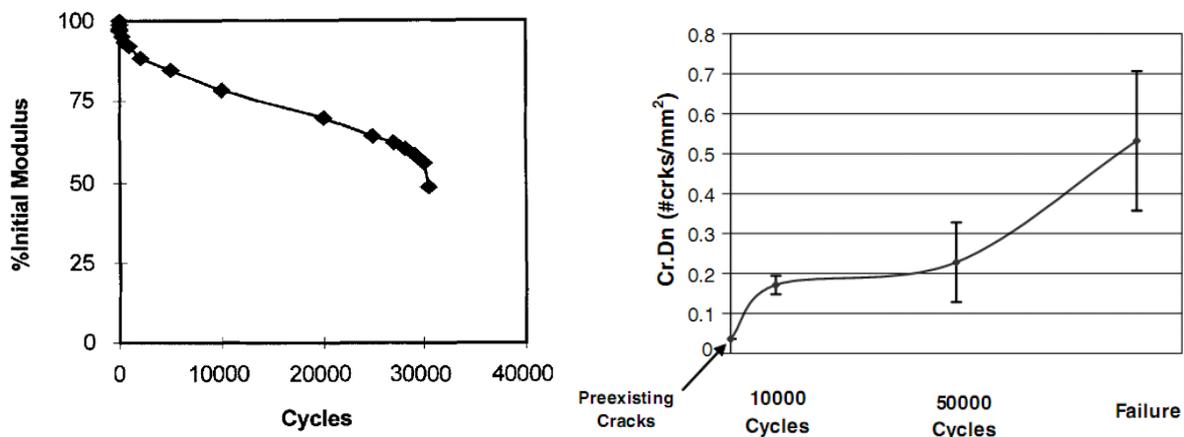


Figure 9 : Similarité entre (a) la réduction du module élastique de l'os cortical en trois phases (extrait de (Boyce *et al.*, 1998)) et l'augmentation de la densité de microfissures (Cr.Dn) au cours d'un test de fatigue en compression sur des éprouvettes de tibia de bovins Extrait de (O'Brien *et al.*, 2007).

Pour conclure, la fatigue de l'os cortical contrôlée par la diminution d'un module élastique (E_{LEBT} , E_{sec} ou E_{load}) permet de créer ou d'augmenter Cr.Dn et/ou Cr.Le et/ou Df.A, dans des proportions qui varient suivant la condition d'arrêt du test (Cr.Dn est différente après une réduction de 20% ou 50% du module élastique (Diab and Vashishth, 2005). Le test en flexion 4 points est généralement utilisé car il concentre de nombreux avantages. Tout d'abord, l'endommagement est induit au centre de l'éprouvette, entre les deux points d'appui intérieur. Les extrémités restent intactes et peuvent servir de contrôle. Il réunit le micro-endommagement issu des tests en tension et en compression car la portion d'os située vers l'extérieur de la flexion est en extension tandis que celle située à l'intérieur de la flexion est en compression. Enfin comme nous le verrons dans les prochains chapitres, la flexion 4 points permet aussi de faire des tests de ténacité et la forme parallélépipédique des éprouvettes est idéale pour connaître les modes de vibration qui seront utilisés pour les mesures acoustiques non-linéaires. Pour ces raisons, nous avons choisi le test de flexion 4 points.

Site anatomique	Fatigue méca	Cr.Dn [# /mm ²]	Cr.Le [μm]	Df.A [μm ² /mm ²]	Technique histo	longi/transv	Ref
Humain							
Fémur		0.21 (0.16)	92.8	-	fuchsin	transv	(Norman and Wang, 1997)
Fémur		0.3 (0.3)	-	-	fuchsin	transv	(Jepsen <i>et al.</i> , 1999)
Fémur	Tens	-	damage 43.5 (17.9)	-	-	longi	(Akkus <i>et al.</i> , 2003)
Fémur		0.15 (0.16)	jeune 339 vieux 301	-	fuchsin fluo	longi	(Wasserman <i>et al.</i> , 2008)
Fémur	flex 4 pt	intact 0.21 (0.21) damage 0.29 (0.23)	intact 79 (21) damage 95 (25)	-	fuchsin	transv	(Sobelman <i>et al.</i> , 2004)
Fémur	Comp	intact 0.1 (0.06) damage 0.98 (0.32)	intact 84 (10) damage 100 (19)	-	Fuchsin + μCT	longi	(Landrigan <i>et al.</i> , 2011)
Fémur		âge >70: >1.5 âge <60: <1	-	-	fluorescein fluo	longi	(Zioupos, 2001)
Fémur		femme>45: 1 à 5 homme>45: 0.5 à 2	-	-	fuchsin		(Schaffler <i>et al.</i> , 1995)
Tibia		0.17 (0.16)	94.7	-	fuchsin	transv	(Norman and Wang, 1997)
Tibia	flex 4 pt	intact comp <0.5 tens <0.5 damage comp >1.5 tens <0.5	-	intact comp <2 tens <2 damage comp <2 tens >20	fuchsin normal et fluo	transv	(Boyce <i>et al.</i> , 1998)
Tibia	flex 4 pt	damage jeune 0.13 vieux 0.27	damage jeune 63 vieux 136	damage jeune 0.17 vieux 0.05	fuchsin	longi	(Diab <i>et al.</i> , 2006)
Tibia		jeune: <0.04 vieux: >0.1	-	jeune: >0.05 vieux: <0.01	fuchsin	transv	(Diab and Vashishth, 2007)
côte 8-10		trans: 0.19 uranyl : 0.21 uranyl+BSE: 0.08	-	-	fuchsin ou Uranyl (transmit ou BSE)	transv	(Schaffler <i>et al.</i> , 1994)
6ème côte		0.14	88 (38)	-	fuchsin	transv	(Burr and Stafford, 1990)
6ème côte		trans: 0.07 (0.06) fluo: 0.13 (0.93)	trans: 76 (27.8) fluo: 82.2 (28.9)	-	fuchsin fluo	transv	(Lee <i>et al.</i> , 1998)
9ème côte		0.16 (0.13)	longi: 404 (145) transv: 97 (38)	-	fuchsin	3D	(O'Brien <i>et al.</i> , 2000)
2 nd & 5 ^{ème} métatarse		2 nd : 0.24 (0.21) 5 ^{ème} : 0.35 (0.32)	2 nd : 75.9 (18.9) 5 ^{ème} : 79.6 (26.3)	-	fuchsin	transv	(Donahue <i>et al.</i> , 2000)
Bovin							
Tibia	Comp	intact longi : 0.02 (0.02) transv : 0.04 (0.03) damage longi: 0.59 transv: 0.80	intact longi : 67 (45) transv : 52 (35) damage longi: 331 (132) transv : 231 (106)	-	calcein + xylenol + Alizarin + calcein blue fluo	longi + transv	(O'Brien <i>et al.</i> , 2003)

Site anatomique	fatigue méca	Cr.Dn [# /mm ²]	Cr.Le [μm]	Df.A [μm ² /mm ²]	Technique histo	longi/transv	Ref
Bovin							
Tibia	Comp	intact <0.1 damage >0.5	intact 56 (50) damage 281 (119)	-	calcein + xylenol + Alizarin + calcein blue fluo	transv	(O'Brien <i>et al.</i> , 2007)
Tibia	Tens	intact 2.99 (0.3) damage 4.04 (0.74)	intact 80 (13) damage 79 (13)	-	lumière	transv	(Schaffler <i>et al.</i> , 1989)
Tibia	flex 4 pt	intact comp 0.04 (0.11) tens 0.11 (0.22) damage comp 0.18 (0.04) tens 0.26 (0.08)	-	intact comp 0.27 tens 0.47 damage comp 0.21 tens 1.67	fuchsin	longi	(Diab and Vashishth, 2005)
Tibia	flex 4 pt	intact 0.26 (0.68) damage 0.26 (0.45)	intact 41 (228) damage 108 (63)	-	calcein fluo	longi	(Landrigan and Roeder, 2009)
Canin							
Fémur entier	flex 3 pt	intact 0.04 (0.03) damage 0.07 (0.06)	intact 68.5(24.2) damage 62.7(15.7)	-	fuchsin	transv	(Burr <i>et al.</i> , 1998)
Radius	-	0.011 (0.001)	58.1 (3.0)	-	fuchsin	transv	(Mori and Burr, 1993)
Cheval							
Tibia et Fémur	Flex 4 pt	-	damage : 10-100	-	fluorescein fluo	transv	(Zioupos <i>et al.</i> , 1994)
Radius	flex 4 pt	damage >1	damage : 10-1000	-	fluorescein fluo	longi	(Reilly and Currey, 1999)
Cannon		Endoste 0.22 (0.53) Périoste 1.51 (2.51)	Endoste 45.5 Périoste 26.5	-	fuchsin	transv	(Martin <i>et al.</i> , 1996)
Ovin							
Radius	flex 4 pt	damage : > 2	damage 82 à 440	-	calcein or xylenol fluo	transv	(Mohsin <i>et al.</i> , 2006b)
Radius		-	Longi : 488 (151) Transv 88 (21)	-	fluo	3D	(Mohsin <i>et al.</i> , 2006a)
Rat							
Ulna (<i>in vivo</i>)	flex 2pt	damage : 3.39 (1.71)	-	-	fuchsin fluo	transv	(Bentolila <i>et al.</i> , 1998)
Ulna (<i>in vivo</i>)	flex 2pt	1500 cyc 1.88(0.76) 3000 cyc 1.51(0.43) 4500 cyc 1.97(0.52)	-	1500 cyc 5.5 3000 cyc 5.4 4500 cyc 8.5	fuchsin fluo	transv	(Herman <i>et al.</i> , 2010)
Ulna (<i>in vivo</i>)	flex 2 pt	damage 0.17 (0.15)	damage : 328 (321)	-	fuchsin	transv	(Danova <i>et al.</i> , 2003)

flex : flexion ; *pt* : point ; *comp* : compression ; *tens* : tension ; *transv* : coupe transverse ; *longi* : coupe longitudinale ; *fluo* : microscopie à épifluorescence ; *cyc* : cycle ;

Table II : Listes des études ayant mesuré l'endommagement de l'os cortical avant et/ou après test mécanique. Trois paramètres sont généralement mesurés. Ce sont la densité de microfissures (Cr.Dn), la longueur moyenne des microfissures (Cr.Le) et la surface de l'endommagement diffus (Df.A). Les mesures ont été effectuées sur des coupes transverses ou longitudinales avec différents types d'agents de contraste.

1.3.2 Ténacité: initiation et propagation d'une microfissure localisée

La ténacité est une propriété qui décrit la capacité d'un matériau à contenir la propagation d'une fissure pour résister à la fracture. Suivant si le matériau est fragile ou ductile, l'amorçage et à la propagation de la fissure sont analysés à l'aide des concepts de :

- la mécanique linéaire-élastique de la rupture (Linear Elastic Fracture Mechanics LEFM), qui ne peut être appliquée qu'aux matériaux présentant un comportement linéaire élastique et fragile (i.e. les céramiques).
- la mécanique élasto-plastique de la rupture (Post Yield Fracture Mechanics PYFM), qui tente de prendre en considération le cas des matériaux ductiles comme les matériaux composites.

Lorsque le matériau est fragile, le phénomène d'amorçage de la fissure est suivi par une phase de propagation présentant un caractère instable (la vitesse de fissuration croît, l'énergie nécessaire à la propagation est entièrement fournie par l'énergie de déformation élastique emmagasinée au moment de l'amorçage). Par contre, lorsque le matériau est ductile, la propagation de la fissure est stable (la vitesse de fissuration ne croît pas, la propagation nécessite un apport d'énergie supplémentaire par le milieu extérieur).

Dans le cas de l'os cortical, aucune norme n'existe pour déterminer la ténacité de l'os. La plupart des auteurs se sont basés sur le facteur d'intensité de contrainte critique K_c issu de la LEFM qui quantifie la ténacité à l'amorçage de la fissure (Table III). D'autres auteurs prennent en compte le caractère ductile et non-linéaire de l'os et quantifie la ténacité de l'os à l'aide de l'intégrale de contour J (ou intégrale de Rice) de la PYFM (Table III). De plus comme la propagation de la fissure nécessite un apport d'énergie constant ou croissant, la plupart des auteurs mesurent aussi la courbe de résistance à la fissuration (dite courbe R) qui permet d'évaluer la variation de la ténacité (K_r ou J_r) en fonction de l'avancée de fissure (Table III).

Site anatomique	Longi / Transv	Géométrie	vitesse [mm/min]	K_{cJ} [Mpa.m ^{1/2}]	J [kPa.m]	pente courbe en R [Mpa.m ^{1/2} /mm]	fissure [µm]	technique	Référence
Théorie LEFM (Linear Elastic Fracture Mechanics LEFM)									
Humain									
tibia humain + bovin	longi	CT	0.5	humain 4.0-4.3 bovin 4.7-6.7	-	-	-	-	(Norman <i>et al.</i> , 1995)
tibia humain + bovin	longi	CT	0.05	humain 1.6 bovin 3.9	-	humain 0.5 bovin 1	<2500	jauge + µscope	(Vashishth <i>et al.</i> , 1997)
Fémur	transv	SENB	0.1	6.4	1.2	-	-	µscope	(Ziopoulos and Currey, 1998)
Fémur	transv longi	CT	0.09	Longi 1.7 transv 3.5	-	-	-	-	(Akkus <i>et al.</i> , 2000)
Fémur	transv		5	young 5.1 old 4.3	-	-	-	-	(Wang <i>et al.</i> , 2002)
Humérus	transv longi	SENB	0.6	Longi 1.7 transv 3.5	-	-	-	-	(Nalla <i>et al.</i> , 2003)
Humérus	longi	CT	0.9	young 1.7-2.2 old 0.9-1.4	-	young 0.3-0.5 old 0.02-0.1	-	Compliance	(Nalla <i>et al.</i> , 2004)
Humérus	longi	CT	0.9	Longi 1.7 -2.2	-	0.3-0.4	-	Compliance + µscope	(Nalla <i>et al.</i> , 2005)
Animaux									
métatarse cheval	transv	CT	0.1	4.3-4.7	-	1 à 2	<2500	Compliance	(Malik <i>et al.</i> , 2003)
corne +bovin	?	CT	0.05	corne 3 bovin 4	-	corne 2.6 bovin 1.4	<1.5	jauge	(Vashishth, 2004)
tibia bovin	transv	SENB	0.18	intact 2.6 damage 2	-	-	-	-	(Yeni and Fyhrie, 2002)
tibia bovin	transv	SENB	0.18	intact 2.7-3 damage 2-2.3	-	-	-	-	(Diab and Vashishth, 2005)
Théorie PYFM (Post Yield Fracture Mechanics)									
Humain									
Humérus	transv longi	SENB	0.002 à 0.36	longi 1 transv 1	longi 0.1 transv 0.1	longi 0.5 transv 50	150-7000	Compliance	(Koester <i>et al.</i> , 2008)
Fémur+ tibia	transv longi	SENB	0.18		longi 0.4 transv 9.9				(Peterlik <i>et al.</i> , 2005)
Fémur	transv longi	CT	0.01	longi 2.5 transv 6.3		longi 0.2 transv 6.1	<3000	camera	(An <i>et al.</i> , 2011)
Fémur	transv	SENB		intact 1.8 collagène dégradé 0.7		intact 31.8 collagène dégradé 5.4	<700	Compliance	(Barth <i>et al.</i> , 2010)
Humérus fémur tibia humain	transv	SENB	0.6	young 4.1-6.7 old 4.5-6.2		young 28-42 old 26-36	<400	Compliance	(Koester <i>et al.</i> , 2011)
Animaux									
fémur bovin	transv longi	CT	1	longi 5.7-6.6 transv 9.7-11	longi 2-2.8 transv 5.9-7.6	-	-	-	(Yan <i>et al.</i> , 2007)
corne	transv	SENB	0.9	longi 1 transv 1	longi 0.1 transv 0.1	longi 2-3 transv 40	<700	Compliance	(Launey <i>et al.</i> , 2010)

Table III : Liste des études récentes menées principalement sur des éprouvettes d'os humain et ayant mesuré la ténacité d'amorçage (K_c ou J) ou la variation de la ténacité au cours de la propagation de la fissure (pente de la courbe en R = $\Delta K_c/\Delta a$) pour différentes conditions. *CT* : compact tension ; *SENB* : Single-Edge Notched Bend ;

Il existe plusieurs modes de sollicitation des éprouvettes d'os cortical qui correspondent en pratique à trois modes de rupture différents (Fig.10) : le mode I (ouverture en tension) et les modes II et III (ouverture en cisaillement parallèle (II) ou perpendiculaire (III) au plan de la fissure). En pratique, la plupart des tests de ténacité ont été réalisés selon le mode I, avec l'entaille perpendiculaire (i.e. transverse) (Table III) ou parallèle (i.e. longitudinale) (Table III) à la direction des osteons. Notons que bien que la sollicitation suivant le mode II nécessite une méthodologie et un cadre théorique spécifique à l'os (Pereira *et al.*, 2011), quelques mesures ont été effectuées par Norman et Yeni (Norman *et al.*, 1996; Yeni *et al.*, 1997; Norman *et al.*, 1998; Yeni *et al.*, 1998). Enfin, il est possible de combiner plusieurs modes à la fois suivant la configuration expérimentale afin de s'approcher des conditions *in-vivo* (Zimmermann *et al.*, 2010; Olvera *et al.*, 2011).

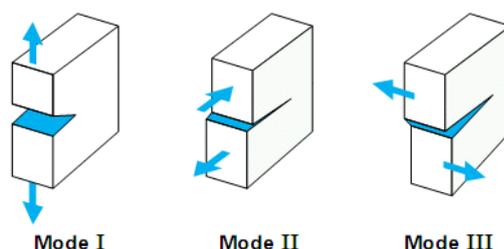


Figure 10 : Mode de sollicitation en mécanique de la rupture. Extrait de (Krawczak, 2008)

Les tests de ténacité nécessitent des éprouvettes de formes particulières. Il existe essentiellement deux types de géométrie: 1) le barreau avec une encoche au centre pour les tests en flexion 3 ou 4 points [*en anglais* « *Single-Edge Notched Bend* » (SENB)], 2) le cube avec une encoche sur le côté et deux trous pour accrocher les mors de la machine de traction [*en anglais* « *compact tension* » (CT)] (Fig.11). Comme la propagation de la microfissure est souvent rapide, il est difficile d'arrêter le test de ténacité avant la rupture de l'échantillon afin d'analyser les caractéristiques géométriques de la microfissure. Afin de palier à ce problème, Nalla & al ont eu l'idée de faire deux encoches réparties symétriquement sur les éprouvettes SENB (Nalla *et al.*, 2003). Comme la fracture ne se produit qu'à partir d'une des encoches, l'autre microfissure reste figée à mi-chemin du processus de fracture et peut par exemple être imagée par microscopie électronique à balayage (Nalla *et al.*, 2003; McCormack *et al.*, 2012) ou microscopie à épifluorescence (Kulin *et al.*, 2011a; b).

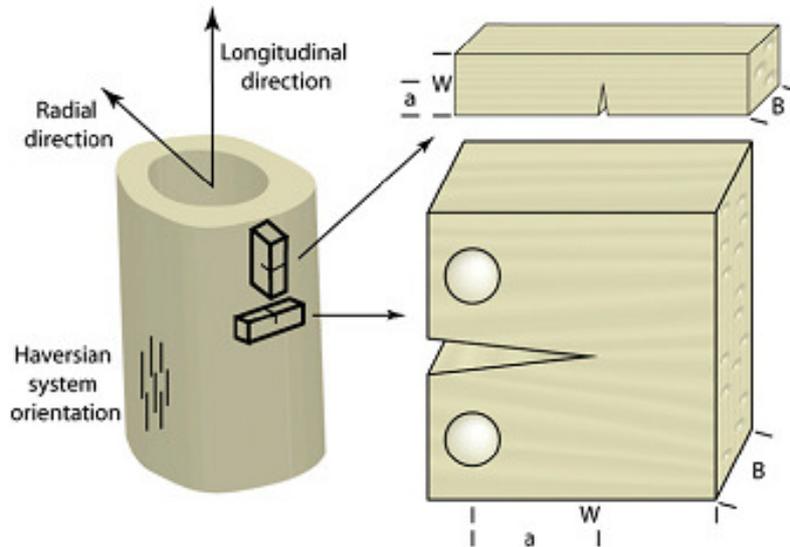


Figure 11 : Géométries couramment utilisées pour les tests de ténacité. (En haut à droite) Single-Edge Notched Bend (SENB) ; (En bas à droite) Compact tension. a : longueur de l'entaille ; W : hauteur et B : largeur de l'éprouvette. Extrait de (Ritchie *et al.*, 2008)

La détermination de la courbe R nécessite l'évaluation de la longueur de la fissure au cours du test de ténacité, ce qui est loin d'être trivial. Certains auteurs utilisent des jauges (Vashishth *et al.*, 1997; Vashishth, 2004) tandis que d'autres tentent d'observer directement la microfissure en utilisant des caméras (An *et al.*, 2011) ou des microscopes optiques (Zioupos and Currey, 1998). La détermination de la longueur totale de la microfissure est partielle car elle repose seulement sur la partie visible de la microfissure à la surface de l'éprouvette et ne tient pas compte de la microfissure à l'intérieur de l'éprouvette. De plus, il est difficile d'estimer la longueur de la microfissure car celle-ci n'est pas linéaire, surtout lors de sollicitation en mode I transverse. Pour cette raison, une technique permettant l'estimation de la longueur de la microfissure par l'intermédiaire d'une courbe de calibration basée sur la mesure de compliance de l'éprouvette d'os au cours de la progression de la microfissure a été développée (Malik *et al.*, 2002; Nalla *et al.*, 2005; Creel *et al.*, 2009). Elle est cependant imprécise car elle ne prend pas en compte l'anisotropie de l'os et reproduit difficilement la longueur effective de la microfissure lorsque celle-ci subit de nombreuses déflexions (Creel *et al.*, 2009). A notre connaissance, aucune étude n'a tenté d'évaluer les caractéristiques géométriques 3-D (longueur moyenne ou maximale, aire...) de la microfissure au cours de la détermination de la courbe R.

Les mécanismes à la base de la ténacité de l'os cortical prennent en compte de nombreuses variables (Fig.12). Ainsi, le comportement quasi-ductile de l'os cortical varie

suivant le mode de sollicitation. En effet, la ténacité à l'amorçage (K_c ou J) est généralement plus grande en mode I transverse que longitudinal (Behiri and Bonfield, 1989; Phelps *et al.*, 2000; Nalla *et al.*, 2003; Yan *et al.*, 2007; An *et al.*, 2011; Koester *et al.*, 2011) bien que quelques études récentes trouvent des valeurs similaires en prenant en compte le caractère non-linéaire de l'os (Koester *et al.*, 2008; Launey *et al.*, 2010). Par contre, la différence est très marquée lors de la propagation de la microfissure. La pente de la courbe en R est un ordre de grandeur supérieur en mode I transverse qu'en mode I longitudinal (Koester *et al.*, 2008; Launey *et al.*, 2010; An *et al.*, 2011). Cela peut s'expliquer par la présence des lignes cémentantes difficilement franchissables par la microfissure (Fig.12). En mode transverse, les lignes cémentantes agissent comme des barrières obligeant la microfissure à dévier sa route (Nalla *et al.*, 2003). Les multiples déflexions de la microfissure nécessitent un apport d'énergie supplémentaire important pour qu'elle puisse continuer à se propager. En mode longitudinal, les lignes cémentantes ne jouent plus leur rôle de barrière mais deviennent des guides le long desquels la microfissure peut se propager assez facilement. Il existe cependant des mécanismes qui permettent le ralentissement de la fissure tel que le pontage [*en anglais* « *bridging* »] (Fig.12). Les pontages peuvent être vus à l'échelle microscopique comme des passerelles entre deux microfissures reliées par des fibres de collagène (Nalla *et al.*, 2003). L'origine des pontages se trouverait dans l'arrangement et l'orientation des fibres de collagène (voir paragraphe 1.1.1). Ainsi Peterlick & *al* ont montré que l'énergie nécessaire à la propagation des fissures augmente de deux ordres de grandeur lorsque les fibres de collagène passent d'une orientation parallèle à la direction de la fissure à une orientation perpendiculaire (Peterlik *et al.*, 2005). Suivant l'alignement des fibres de collagène et de la fissure, le comportement de l'os cortical passerait d'un état quasi-fragile (0°) à quasi-ductile (90°). Le collagène serait donc l'élément essentiel dans la résistance à la fissuration de l'os cortical, de par ses propriétés viscoélastiques et géométriques (i.e. orientation). C'est aussi ce que suggèrent les études ayant comparé l'os cortical humain minéralisé à l'os cortical issu des cornes d'animaux qui est surtout collagénique car très peu minéralisé (Vashishth, 2004; Launey *et al.*, 2010). Enfin, une étude récente (McCormack *et al.*, 2012) montre que plus le tissu osseux est minéralisé au point d'amorçage de la fissure, plus il est nécessaire d'apporter d'énergie (K_c augmente) pour l'amorcer. Par contre la propagation de la fissure sera facilitée (K_r diminue). Ainsi plus l'os est minéralisé, plus son comportement devient quasi-fragile.

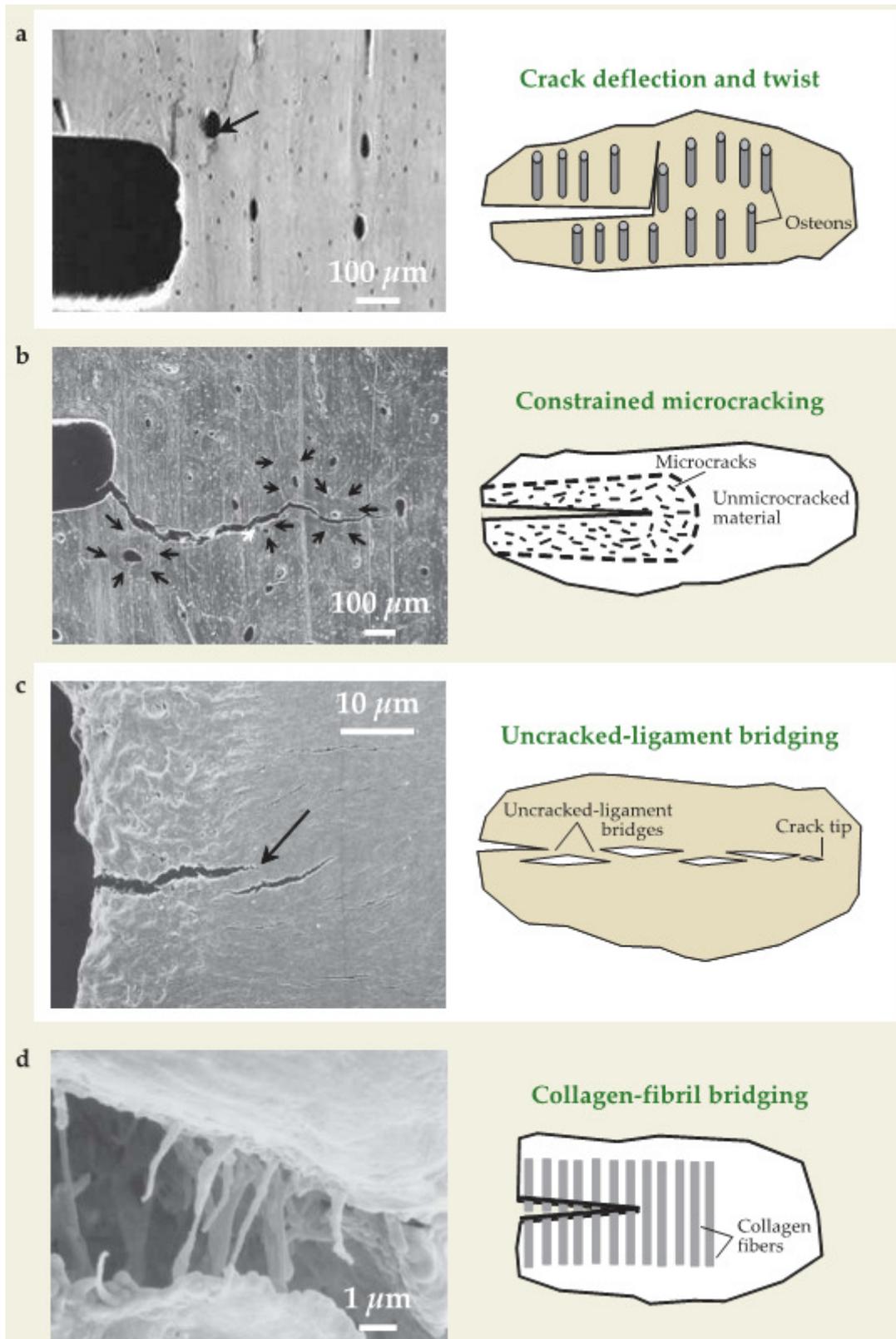


Figure 12 : Mécanismes à la base de la ténacité de l'os. a) déflexion du front de propagation de la microfissure principale à cause de la présence de barrières naturelles (les lignes cémentantes) ; b) création de nouvelles microfissures dissipant son énergie de propagation; c) pontages matriciels et d) pontage collagénique assurant la liaison cohésion entre les bords de la microfissure. Extrait de (Ritchie *et al.*, 2009)

Le comportement quasi-fragile s'observe aussi lorsque l'os est soumis à un taux de déformation très rapide, par exemple équivalent à un choc, mettant en évidence la variation de la ténacité en fonction de la vitesse de sollicitation (Kulin *et al.*, 2011a; b; Ural *et al.*, 2011).

L'âge est un facteur important car les paramètres de ténacité K_c (initiation) et K_r (propagation) diminuent significativement au cours du vieillissement (Nalla *et al.*, 2004; Nalla *et al.*, 2006). De plus, cette diminution serait plus importante lorsque la sollicitation se fait en mode I longitudinal qu'en mode I transverse (Koester *et al.*, 2011). Cela serait lié à l'augmentation de la densité des ostéons qui limiterait les déflexions de la fissure mais aussi la formation des pontages (Yeni *et al.*, 1997; Zimmermann *et al.*, 2011) mais aussi au changement de propriété du collagène (Wang *et al.*, 2002; Barth *et al.*, 2010). Rappelons qu'avec l'âge s'accumulent les produits terminaux de la glycation [*en anglais* « *Advanced Glycation end-products* » (*AGE*)]. Ces protéines forment des pontages croisés au niveau de la matrice de collagène qui augmentent sa rigidité mais empêchent le glissement/frottement des fibres à l'origine d'un des mécanismes de dissipation de l'énergie (Buehler, 2007; Zimmermann *et al.*, 2011).

L'état d'endommagement initial de l'os joue aussi un rôle dans la ténacité de l'os cortical. Ainsi l'accumulation d'endommagement diffus (Parsamian and Norman, 2001; Diab and Vashishth, 2005) et/ou de microfissures (Norman *et al.*, 1998; Yeni and Fyhrie, 2002) réduisent significativement l'énergie nécessaire à l'initiation de la fissure. Des résultats similaires ont été évoqués précédemment lors d'une exposition prolongée aux biphosphonates, suspecté induire une accumulation de micro-endommagement osseux (voir paragraphe 1.2.2).

Enfin le rôle de la porosité n'est pas clairement identifié. Elle pourrait réduire (Yeni *et al.*, 1997) ou pas (Phelps *et al.*, 2000) la ténacité à l'amorçage. Des simulations récentes tendent à montrer que la porosité n'affecte pas la ténacité à l'amorçage. Par contre, la porosité diminuerait la résistance à la propagation de la fissure (Ural *et al.*, 2011).

1.4 Détection et visualisation du micro-endommagement osseux

La caractérisation et la visualisation du micro-endommagement osseux représentent toujours un défi pour la communauté scientifique. Actuellement, l'histomorphométrie reste la

technique de référence pour caractériser l'accumulation de l'endommagement *in-vitro*. Mais d'autres techniques sont en train d'émerger dans les laboratoires.

1.4.1 Le « gold standard »: l'histomorphométrie

L'histomorphométrie est toujours la technique de référence. Elle est par nature, invasive et destructive car elle nécessite l'extraction d'échantillon d'os de taille au minimum millimétrique, afin de pouvoir préparer des coupes de quelques centaines de microns d'épaisseur. Les échantillons d'os sont généralement teints dans la masse par des colorants non-spécifiques (e.g. la Fuchsine basique (Burr and Stafford, 1990) ou des colorants spécifiques chémo-luminescents (e.g. le xylénol orange, la calcéine verte) qui se lient préférentiellement aux ions calcium présents sur les bords de la fissure (Lee *et al.*, 2000a; Lee *et al.*, 2000b; O'Brien *et al.*, 2002). Les microfissures et l'endommagement diffus sont détectés sur des sections (i.e. en deux-dimensions (2-D)) d'os transverses et/ ou longitudinales (O'Brien *et al.*, 2003; Diab and Vashishth, 2007) sous microscope en transmission de lumière blanche ou par microscopie confocale épifluorescente à balayage laser (Lee *et al.*, 2003). Dans certaines études, la microscopie électronique à balayage (Backscatter Scanning Electron (BSE)) associée un marqueur d'acétate d'uranyle de plomb est préférée pour détecter le micro-endommagement (Schaffler *et al.*, 1994; Tang and Vashishth, 2007). Comme l'histomorphométrie nécessite des coupes 2-D d'os, il est très difficile d'analyser la taille et l'orientation des microfissures en trois-dimensions (3-D) (O'Brien *et al.*, 2000; Mohsin *et al.*, 2006a; Kazakia *et al.*, 2007). De plus, les microfissures sont souvent relativement peu nombreuses dans les coupes 2-D, ce qui requiert l'analyse d'un grand nombre de coupes 2-D en série afin d'avoir des résultats statistiquement fiables (Martin *et al.*, 2007). Cette procédure est longue et fastidieuse tout en étant opérateur-dépendant (aucune procédure de traitement automatique n'existe à ce jour). Les limitations susmentionnées de l'histomorphométrie ont conduit à l'émergence de techniques alternatives.

1.4.2 Les techniques émergentes

Une des techniques les plus étudiés est certainement la tomographie à rayons X (μ CT) associée à un agent de contraste tel que l'iode (Lee *et al.*, 2003), le sulfure de plomb (Tang and Vashishth, 2007), le sulfate de barium (BaSO_4) (Leng *et al.*, 2008; Landrigan *et al.*, 2011; Turnbull *et al.*, 2011) ou encore les nanoparticules d'or (Zhang *et al.*, 2010). Cette technique

permet de quantifier et localiser le micro-endommagement dans la totalité d'un volume d'os (de taille centimétrique). Cependant, la relativement faible résolution, de l'ordre de $10\mu\text{m}$, reste bien inférieure à celle de l'histomorphométrie et n'est donc pas suffisante pour détecter des microfissures isolées, ni pour évaluer leurs caractéristiques géométriques. Cette limitation est dépassée par la tomographie à rayonnement synchrotron (SR- μCT) qui est la seule technique d'imagerie 3-D actuellement disponible capable de donner accès à la géométrie d'une microfissure, avec une résolution micrométrique, de l'os cortical (Nalla *et al.*, 2005; Voide *et al.*, 2009; Voide *et al.*, 2011) ou de l'os trabéculaire (Thurner *et al.*, 2006; Larrue *et al.*, 2007; Larrue *et al.*, 2011). Cependant, les techniques μCT et SR- μCT ne peuvent pas être appliquées *in-vivo* à cause de l'exposition du corps humain à des doses de radiation létales.

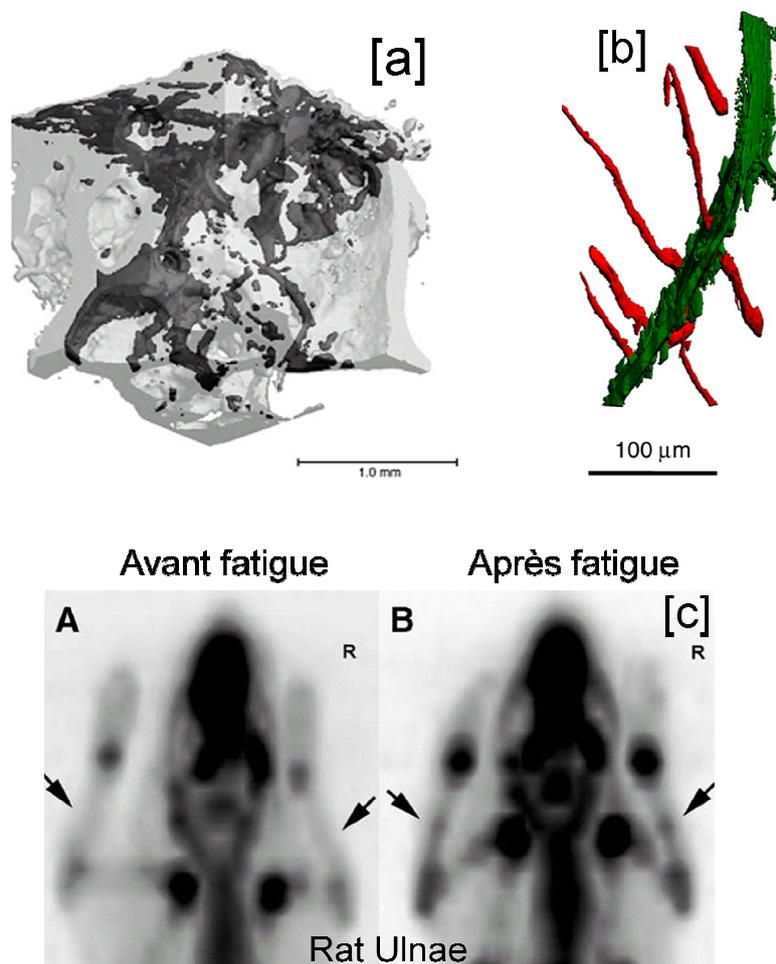


Figure 13 : Visualisation de micro-endommagement (a) par tomographie à rayons X associée à un agent de contraste tel que le sulfure de plomb (Tang and Vashishth, 2007) ; (b) par tomographie à rayonnement synchrotron (Voide *et al.*, 2011) ; (c) par tomographie à émission de positons (TEP) (Li *et al.*, 2005).

Les techniques mentionnées jusqu'à présent ne donnent que des informations locales, pas forcément représentatives du changement d'état global ou volumétrique du micro-endommagement osseux. De plus, seuls des échantillons d'os provenant de biopsies (chirurgie invasive) ou prélevés sur des cadavres peuvent être examinés. Plusieurs modalités, incluant la tomographie à émission de positons (TEP), la résonance magnétique nucléaire (RMN) de type T2 (temps de relaxation) et l'acoustique non-linéaire sont en cours de développement pour caractériser de manière non-destructive (ou non-invasive) le micro-endommagement de l'os *in-vivo*. L'imagerie PET associée à un marqueur nucléaire à base de fluorure de sodium ($[^{18}\text{F}]\text{NaF}$) permet la détection *in-vivo* de régions nouvellement endommagées situées dans l'ulna (Li *et al.*, 2005) ou le tibia (Li *et al.*, 2011) de rats. Par contre la résolution de cette technique est encore relativement faible et le marqueur nucléaire n'est pas spécifique aux microfissures osseuses. Les mesures RMN ont mis en évidence qu'il était possible de corrélérer le temps de relaxation T2 avec la densité de fissures induites par un test de fatigue en flexion 4-points (Nicoletta *et al.*, 2011). Cependant, cette technique n'est pas directement sensible à un niveau absolu de micro-endommagement osseux mais un changement de la porosité apparente de l'os lié à la présence de microfissures (Ni and Nicoletta, 2005). Enfin il a été montré que les techniques d'acoustique non-linéaire issues du contrôle non destructif sont aussi sensibles au micro-endommagement osseux (Muller *et al.*, 2008; Moreschi *et al.*, 2011). L'endommagement peut être localisé (Renaud *et al.*, 2008) ou évalué sur un os entier ou presque (Ulrich *et al.*, 2007). Contrairement au PET et à la RMN, les non-linéarités acoustiques mesurées sont par nature spécifiquement liées à la présence de microfissures. Elles devraient donc donner accès plus directement à une mesure quantitative du micro-endommagement osseux. De surcroît, les mesures ultrasonores sont envisageables *in-vivo*.

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous venons de voir que l'os cortical possède de nombreux mécanismes permettant de lutter efficacement contre sa fragilisation. Ces mécanismes (remodelage osseux, pontage de fibres de collagènes, microfissuration...) peuvent être affectés par de nombreux paramètres (âges, maladie, microstructure...) susceptibles d'entraîner une modification des propriétés mécaniques globales (rigidité, ténacité...) de l'os cortical. Bien que la place du micro-endommagement osseux (microfissure et endommagement diffus) dans le processus de fragilisation ne soit pas clairement établie *in-*

in vivo, un nombre important d'études laissent à penser que le micro-endommagement osseux est un acteur essentiel de la fragilité du tissu osseux.

D'autre part, nous avons montré qu'il est possible d'augmenter de manière contrôlée l'état d'endommagement d'éprouvettes d'os calibrées par des tests mécaniques de fatigue et de ténacité. Notons qu'il existe peu d'études, en particulier dans l'os cortical humain (moins d'une trentaine), sur lesquelles s'appuyer et que par conséquent les résultats sont parfois contradictoires.

Enfin, nous avons vu qu'il n'existe pas de méthodes qui permettent actuellement de quantifier le micro-endommagement d'un organe entier, *in-vivo* ni même *in-vitro*. La technique de référence reste la fastidieuse et très invasive histomorphométrie par microscopie optique (confocale et/ou à épifluorescence). Le développement d'une technique de mesure quantitative, globale et non invasive reste un défi que pourraient relever les techniques ultrasonores non-linéaires.

Bibliographie

- Akkus, O., Jepsen, K. J., and Rimnac, C. M. (2000). "Microstructural aspects of the fracture process in human cortical bone," *Journal of Materials Science* **35**, 6065-6074.
- Akkus, O., Polyakova-Akkus, A., Adar, F., and Schaffler, M. B. (2003). "Aging of microstructural compartments in human compact bone," *Journal of Bone and Mineral Research* **18**, 1012-1019.
- Allen, M. R., and Burr, D. B. (2007). "Three years of alendronate treatment results in similar levels of vertebral microdamage as after one year of treatment," *Journal of Bone and Mineral Research* **22**, 1759-1765.
- Allen, M. R., and Burr, D. B. (2011). "Bisphosphonate effects on bone turnover, microdamage, and mechanical properties: what we think we know and what we know that we don't know," *Bone* **49**, 56-65.
- Allen, M. R., Iwata, K., Phipps, R., and Burr, D. B. (2006). "Alterations in canine vertebral bone turnover, microdamage accumulation, and biomechanical properties following 1-year treatment with clinical treatment doses of risedronate or alendronate," *Bone* **39**, 872-879.
- Allen, M. R., Reinwald, S., and Burr, D. B. (2008). "Alendronate reduces bone toughness of ribs without significantly increasing microdamage accumulation in dogs following 3 years of daily treatment," *Calcified tissue international* **82**, 354-360.
- An, B., Liu, Y., Arola, D., and Zhang, D. (2011). "Fracture toughening mechanism of cortical bone: An experimental and numerical approach," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*.
- Arlot, M. E., Burt-Pichat, B., Roux, J. P., Vashishth, D., Bouxsein, M. L., and Delmas, P. D. (2008). "Microarchitecture influences microdamage accumulation in human vertebral trabecular bone," *Journal of Bone and Mineral Research* **23**, 1613-1618.
- Balena, R., Toolan, B., Shea, M., Markatos, A., Myers, E. R., Lee, S., Opas, E., Seedor, J., Klein, H., and Frankenfield, D. (1993). "The effects of 2-year treatment with the aminobisphosphonate alendronate on bone metabolism, bone histomorphometry, and bone strength in ovariectomized nonhuman primates," *Journal of Clinical Investigation* **92**, 2577.
- Barth, H. D., Launey, M. E., MacDowell, A. A., Ager, J. W., and Ritchie, R. O. (2010). "On the effect of X-ray irradiation on the deformation and fracture behavior of human cortical bone," *Bone* **46**, 1475-1485.
- Behiri, J., and Bonfield, W. (1989). "Orientation dependence of the fracture mechanics of cortical bone," *Journal of biomechanics* **22**, 863-867, 869-872.
- Bentolila, V., Boyce, T. M., Fyhrie, D. P., Drumb, R., Skerry, T. M., and Schaffler, M. B. (1998). "Intracortical remodeling in adult rat long bones after fatigue loading," *Bone* **23**, 275-281.
- Boyce, T. M., Fyhrie, D. P., Glotkowski, M. C., Radin, E. L., and Schaffler, M. B. (1998). "Damage type and strain mode associations in human compact bone bending fatigue," *Journal of Orthopaedic Research* **16**, 322-329.
- Buehler, M. J. (2006). "Nature designs tough collagen: explaining the nanostructure of collagen fibrils," *Proceedings of the National Academy of Sciences* **103**, 12285-12290.
- Buehler, M. J. (2007). "Molecular nanomechanics of nascent bone: fibrillar toughening by mineralization," *Nanotechnology* **18**, 295102.
- Burger, E. H., and Klein-Nulend, J. (1999). "Mechanotransduction in bone-role of the lacunocanalicular network," *Faseb Journal* **13**, 101-112.
- Burr, D. (2002). "Targeted and nontargeted remodeling," *Bone* **30**, 2-4.

- Burr, D. (2011). "Why bones bend but don't break," *J Musculoskelet Neuronal Interact* **11**, 270-285.
- Burr, D., Turner, C., Forwood, M., and Pidaparti, R. (1999). "Quantification of bone damage and crack morphology and its effect on skeletal fragility: response to Zioupos," *Journal of Biomechanics* **32**, 213-215.
- Burr, D. B., Diab, T., Koivunemi, A., Koivunemi, M., and Allen, M. R. (2009). "Effects of 1 to 3 years' treatment with alendronate on mechanical properties of the femoral shaft in a canine model: implications for subtrochanteric femoral fracture risk," *Journal of Orthopaedic Research* **27**, 1288-1292.
- Burr, D. B., Martin, R. B., Schaffler, M. B., and Radin, E. L. (1985). "Bone remodeling in response to in vivo fatigue microdamage," *Journal of Biomechanics* **18**, 189-200.
- Burr, D. B., and Stafford, T. (1990). "Validity of the Bulk-Staining Technique to Separate Artifactual from In vivo Bone Microdamage," *Clinical Orthopaedics and Related Research*, 305-308.
- Burr, D. B., Turner, C. H., Naick, P., Forwood, M. R., Ambrosius, W., Hasan, M. S., and Pidaparti, R. (1998). "Does microdamage accumulation affect the mechanical properties of bone?," *Journal of Biomechanics* **31**, 337-345.
- Cardoso, L., Herman, B. C., Verborgt, O., Laudier, D., Majeska, R. J., and Schaffler, M. B. (2009). "Osteocyte apoptosis controls activation of intracortical resorption in response to bone fatigue," *Journal of bone and mineral research* **24**, 597-605.
- Chapurlat, R., and Delmas, P. (2009). "Bone microdamage: a clinical perspective," *Osteoporosis international* **20**, 1299-1308.
- Chapurlat, R. D., Arlot, M., Burt Pichat, B., Chavassieux, P., Roux, J. P., Portero Muzy, N., and Delmas, P. D. (2007). "Microcrack Frequency and Bone Remodeling in Postmenopausal Osteoporotic Women on Long Term Bisphosphonates: A Bone Biopsy Study," *Journal of Bone and Mineral Research* **22**, 1502-1509.
- Cotton, J. R., Winwood, K., Zioupos, P., and Taylor, M. (2005). "Damage rate is a predictor of fatigue life and creep strain rate in tensile fatigue of human cortical bone samples," *Journal of Biomechanical Engineering-Transactions of the Asme* **127**, 213-219.
- Creel, J., Stover, S., Martin, R., Fyhrie, D., Hazelwood, S., and Gibeling, J. (2009). "Compliance calibration for fracture testing of anisotropic biological materials," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* **2**, 571-578.
- Cummings, S. R., Black, D. M., Nevitt, M. C., Browner, W. S., Cauley, J. A., Genant, H. K., Mascioli, S. R., Scott, J. C., Seeley, D. G., and Steiger, P. (1990). "Appendicular bone density and age predict hip fracture in women," *JAMA: the journal of the American Medical Association* **263**, 665-668.
- Danova, N. A., Colopy, S. A., Radtke, C. L., Kalscheur, V. L., Markel, M. D., Vanderby, R., McCabe, R. P., Escarcega, A. J., and Muir, P. (2003). "Degradation of bone structural properties by accumulation and coalescence of microcracks," *Bone* **33**, 197-205.
- Diab, T., Condon, K. W., Burr, D. B., and Vashishth, D. (2006). "Age-related change in the damage morphology of human cortical bone and its role in bone fragility," *Bone* **38**, 427-431.
- Diab, T., and Vashishth, D. (2005). "Effects of damage morphology on cortical bone fragility," *Bone* **37**, 96-102.
- Diab, T., and Vashishth, D. (2007). "Morphology, localization and accumulation of in vivo microdamage in human cortical bone," *Bone* **40**, 612-618.
- Donahue, S., Sharkey, N., Modanlou, K., Sequeira, L., and Martin, R. (2000). "Bone strain and microcracks at stress fracture sites in human metatarsals," *Bone* **27**, 827-833.

- Donahue, S. W., and Galley, S. A. (2006). "Microdamage in bone: implications for fracture, repair, remodeling, and adaptation," *Critical reviews in biomedical engineering* **34**, 215.
- Fantner, G. E., Hassenkam, T., Kindt, J. H., Weaver, J. C., Birkedal, H., Pechenik, L., Cutroni, J. A., Cidade, G. A. G., Stucky, G. D., and Morse, D. E. (2005). "Sacrificial bonds and hidden length dissipate energy as mineralized fibrils separate during bone fracture," *Nature materials* **4**, 612-616.
- Fleck, C., and Eifler, D. (2003). "Deformation behaviour and damage accumulation of cortical bone specimens from the equine tibia under cyclic loading," *Journal of biomechanics* **36**, 179-189.
- Follet, H., Li, J., Phipps, R. J., Hui, S., Condon, K., and Burr, D. B. (2007). "Risedronate and alendronate suppress osteocyte apoptosis following cyclic fatigue loading," *Bone* **40**, 1172-1177.
- Frost, H. (1960). "Presence of microscopic cracks in vivo in bone," *Henry Ford Hosp Med Bull* **8**, 35.
- Gibson, V. A., Stover, S. M., Martin, R. B., Gibeling, T. C., Willits, N. H., Gustafson, M. B., and Griffin, L. V. (1995). "Fatigue behavior of the equine third metacarpus: Mechanical property analysis," *Journal of Orthopaedic Research* **13**, 861-868.
- Giraud-Guille, M. (1988). "Twisted plywood architecture of collagen fibrils in human compact bone osteons," *Calcified tissue international* **42**, 167-180.
- Gupta, H., and Zioupos, P. (2008). "Fracture of bone tissue: The 'hows' and the 'whys'," *Medical Engineering & Physics* **30**, 1209-1226.
- Gupta, H. S., Wagermaier, W., Zickler, G. A., Aroush, D. R. B., Funari, S. S., Roschger, P., Wagner, H. D., and Fratzl, P. (2005). "Nanoscale deformation mechanisms in bone," *Nano Letters* **5**, 2108-2111.
- Han, Y., Cowin, S. C., Schaffler, M. B., and Weinbaum, S. (2004). "Mechanotransduction and strain amplification in osteocyte cell processes," *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **101**, 16689.
- Herman, B., Cardoso, L., Majeska, R., Jepsen, K., and Schaffler, M. (2010). "Activation of bone remodeling after fatigue: differential response to linear microcracks and diffuse damage," *Bone* **47**, 766-772.
- Holzer, G., Von Skrbensky, G., Holzer, L. A., and Pichl, W. (2009). "Hip fractures and the contribution of cortical versus trabecular bone to femoral neck strength," *Journal of bone and mineral research* **24**, 468-474.
- Hui, S. L., Slemenda, C. W., and Johnston Jr, C. C. (1988). "Age and bone mass as predictors of fracture in a prospective study," *Journal of clinical investigation* **81**, 1804.
- Huja, S. S., Sayeed Hasan, M., Pidaparti, R., Turner, C. H., Garetto, L. P., and Burr, D. B. (1999). "Development of a fluorescent light technique for evaluating microdamage in bone subjected to fatigue loading," *Journal of biomechanics* **32**, 1243-1249.
- Jepsen, K. J., and Davy, D. T. (1997). "Comparison of damage accumulation measures in human cortical bone," *Journal of Biomechanics* **30**, 891-894.
- Jepsen, K. J., Davy, D. T., and Krzypow, D. J. (1999). "The role of the lamellar interface during torsional yielding of human cortical bone," *Journal of Biomechanics* **32**, 303-310.
- Kanis, J., Oden, A., Johnell, O., Jonsson, B., De Laet, C., and Dawson, A. (2001). "The burden of osteoporotic fractures: a method for setting intervention thresholds," *Osteoporosis international* **12**, 417-427.
- Kazakia, G. J., Lee, J. J., Singh, M., Bigley, R. F., Martin, R. B., and Keaveny, T. M. (2007). "Automated high-resolution three-dimensional fluorescence imaging of large biological specimens," *Journal of Microscopy-Oxford* **225**, 109-117.

- Kennedy, O. D., Herman, B. C., Laudier, D. M., Majeska, R. J., Sun, H. B., and Schaffler, M. B. (2012). "Activation of resorption in fatigue-loaded bone involves both apoptosis and active pro-osteoclastogenic signaling by distinct osteocyte populations," *Bone*.
- Koester, K., Barth, H., and Ritchie, R. (2011). "Effect of aging on the transverse toughness of human cortical bone: Evaluation by R-curves," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*.
- Koester, K. J., Ager, J., and Ritchie, R. (2008). "The true toughness of human cortical bone measured with realistically short cracks," *Nature materials* **7**, 672-677.
- Komatsubara, S., Mori, S., Mashiba, T., Ito, M., Li, J., Kaji, Y., Akiyama, T., Miyamoto, K., Cao, Y., and Kawanishi, J. (2003). "Long-Term Treatment of Incadronate Disodium Accumulates Microdamage but Improves the Trabecular Bone Microarchitecture in Dog Vertebra," *Journal of Bone and Mineral Research* **18**, 512-520.
- Komatsubara, S., Mori, S., Mashiba, T., Li, J. L., Nonaka, K., Kaji, Y., Akiyama, T., Miyamoto, K., Cao, Y. P., Kawanishi, J., and Norimatsu, H. (2004). "Suppressed bone turnover by long-term bisphosphonate treatment accumulates microdamage but maintains intrinsic material properties in cortical bone of dog rib," *Journal of Bone and Mineral Research* **19**, 999-1005.
- Krawczak, P. (2008). *Essais des plastiques renforcés* (Ed. Techniques Ingénieur).
- Kulin, R. M., Jiang, F., and Vecchio, K. S. (2011a). "Effects of age and loading rate on equine cortical bone failure," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* **4**, 57-75.
- Kulin, R. M., Jiang, F., and Vecchio, K. S. (2011b). "Loading rate effects on the R-curve behavior of cortical bone," *Acta Biomaterialia* **7**, 724-732.
- Landrigan, M., and Roeder, R. (2009). "Systematic error in mechanical measures of damage during four-point bending fatigue of cortical bone," *Journal of biomechanics* **42**, 1212.
- Landrigan, M. D., Jiliang, L., Turnbull, T. L., Burr, D. B., Niebur, G. L., and Roeder, R. K. (2011). "Contrast-enhanced micro-computed tomography of fatigue microdamage accumulation in human cortical bone," *Bone* **48**, 443-450.
- Larrue, A., Rattner, A., Laroche, N., Vico, L., and Peyrin, F. (2007). "Feasibility of micro-crack detection in human trabecular bone images from 3D synchrotron microtomography," 2007 Annual International Conference of the Ieee Engineering in Medicine and Biology Society, Vols 1-16, 3918-3921.
- Larrue, A., Rattner, A., Peter, Z. A., Olivier, C., Laroche, N., Vico, L., and Peyrin, F. (2011). "Synchrotron Radiation Micro-CT at the Micrometer Scale for the Analysis of the Three-Dimensional Morphology of Microcracks in Human Trabecular Bone," *PLoS ONE* **6**, e21297.
- Launey, M. E., Chen, P. Y., McKittrick, J., and Ritchie, R. O. (2010). "Mechanistic aspects of the fracture toughness of elk antler bone," *Acta Biomaterialia* **6**, 1505-1514.
- Lee, T. C., Arthur, T. L., Gibson, L. J., and Hayes, W. C. (2000a). "Sequential labelling of microdamage in bone using chelating agents," *Journal of Orthopaedic Research* **18**, 322-325.
- Lee, T. C., Mohsin, S., Taylor, D., Parkesh, R., Gunnlaugsson, T., O'Brien, F. J., Giehl, M., and Gowin, W. (2003). "Detecting microdamage in bone," *Journal of Anatomy* **203**, 161-172.
- Lee, T. C., Myers, E. R., and Hayes, W. C. (1998). "Fluorescence-aided detection of microdamage in compact bone," *Journal of Anatomy* **193**, 179-184.
- Lee, T. C., O'Brien, F. J., and Taylor, D. (2000b). "The nature of fatigue damage in bone," *International Journal of Fatigue* **22**, 847-853.
- Lemaitre, J., and Dufailly, J. (1987). "Damage measurements," *Engineering Fracture Mechanics* **28**, 643-661.

- Leng, H. J., Wang, X., Ross, R. D., Niebur, G. L., and Roeder, R. K. (2008). "Micro-computed tomography of fatigue microdamage in cortical bone using a barium sulfate contrast agent," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* **1**, 68-75.
- Li, J., Miller, M. A., Hutchins, G. D., and Burr, D. B. (2005). "Imaging bone microdamage in vivo with positron emission tomography," *Bone* **37**, 819-824.
- Li, Z. C., Jiang, S. D., Yan, J., Jiang, L. S., and Dai, L. Y. (2011). "Small-animal PET/CT assessment of bone microdamage in ovariectomized rats," *Journal of Nuclear Medicine* **52**, 769.
- Malik, C., Gibeling, J., Martin, R., and Stover, S. (2002). "Compliance calibration for fracture testing of equine cortical bone," *Journal of biomechanics* **35**, 701-705.
- Malik, C., Stover, S., Martin, R., and Gibeling, J. (2003). "Equine cortical bone exhibits rising R-curve fracture mechanics," *Journal of biomechanics* **36**, 191-198.
- Martin, R. (2002). "Is all cortical bone remodeling initiated by microdamage?," *Bone* **30**, 8-13.
- Martin, R., Gibson, V., Stover, S., Gibeling, J., and Griffin, L. (1996). "In vitro fatigue behavior of the equine third metacarpus: remodeling and microcrack damage analysis," *Journal of orthopaedic research* **14**, 794-801.
- Martin, R. B., Yeh, O. C., and Fyhrie, D. P. (2007). "On sampling bones for microcracks," *Bone* **40**, 1159-1165.
- Matheson, G., Clement, D., McKenzie, D., Taunton, J., Lloyd-Smith, D., and MacIntyre, J. (1987). "Stress fractures in athletes," *The American Journal of Sports Medicine* **15**, 46-58.
- McBryde, A. M. (1975). "Stress fractures in athletes," *The American Journal of Sports Medicine* **3**, 212-217.
- McCormack, J., Stover, S. M., Gibeling, J. C., and Fyhrie, D. P. (2012). "Effects of mineral content on the fracture properties of equine cortical bone in double-notched beams," *Bone*.
- Milgrom, C., Finestone, A., Sharkey, N., Hamel, A., Mandes, V., Burr, D., Arndt, A., and Ekenman, I. (2002). "Metatarsal strains are sufficient to cause fatigue fracture during cyclic overloading," *Foot & ankle international/American Orthopaedic Foot and Ankle Society [and] Swiss Foot and Ankle Society* **23**, 230.
- Mohsin, S., O'Brien, F. J., and Lee, T. C. (2006a). "Microcracks in compact bone: a three-dimensional view," *Journal of Anatomy* **209**, 119-124.
- Mohsin, S., O'Brien, F. J., and Lee, T. C. (2006b). "Osteonal crack barriers in ovine compact bone," *Journal of Anatomy* **208**, 81-89.
- Moreschi, H., Callé, S., Guerard, S., Mitton, D., Renaud, G., and Defontaine, M. (2011). "Monitoring trabecular bone microdamage using a dynamic acousto-elastic testing method," *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part H: Journal of Engineering in Medicine* **225**, 1-12.
- Mori, S., and Burr, D. B. (1993). "Increased Intracortical Remodeling Following Fatigue Damage," *Bone* **14**, 103-109.
- Mori, S., Harruff, R., Ambrosius, W., and Burr, D. (1997). "Trabecular bone volume and microdamage accumulation in the femoral heads of women with and without femoral neck fractures," *Bone* **21**, 521-526.
- Mulcahy, L. E., Taylor, D., Lee, T. C., and Duffy, G. P. (2011). "RANKL and OPG activity is regulated by injury size in networks of osteocyte-like cells," *Bone* **48**, 182-188.
- Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., Johnson, P., and Laugier, P. (2008). "Nonlinear ultrasound can detect accumulated damage in human bone," *Journal of Biomechanics* **41**, 1062-1068.

- Nalla, R., Kruzic, J., Kinney, J., Balooch, M., Ager, J., and Ritchie, R. (2006). "Role of microstructure in the aging-related deterioration of the toughness of human cortical bone," *Materials Science and Engineering: C* **26**, 1251-1260.
- Nalla, R. K., Kinney, J. H., and Ritchie, R. O. (2003). "Mechanistic fracture criteria for the failure of human cortical bone," *Nature Materials* **2**, 164-168.
- Nalla, R. K., Kruzic, J. J., Kinney, J. H., and Ritchie, R. O. (2005). "Mechanistic aspects of fracture and R-curve behavior in human cortical bone," *Biomaterials* **26**, 217-231.
- Nalla, R. K., Kruzic, J. J., and Ritchie, R. O. (2004). "On the origin of the toughness of mineralized tissue: microcracking or crack bridging?," *Bone* **34**, 790-798.
- Ni, Q. W., and Nicolella, D. P. (2005). "The characterization of human cortical bone microdamage by nuclear magnetic resonance," *Measurement Science & Technology* **16**, 659-668.
- Nicolella, D. P., Ni, Q., and Chan, K. S. (2011). "Non-destructive characterization of microdamage in cortical bone using low field pulsed NMR," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* **4**, 383-391.
- Norman, T., Vashishth, D., and Burr, D. (1995). "Fracture toughness of human bone under tension," *Journal of biomechanics* **28**, 309-320.
- Norman, T. L., Nivargikar, S. V., and Burr, D. B. (1996). "Resistance to crack growth in human cortical bone is greater in shear than in tension," *Journal of Biomechanics* **29**, 1023-1031.
- Norman, T. L., and Wang, Z. (1997). "Microdamage of human cortical bone: Incidence and morphology in long bones," *Bone* **20**, 375-379.
- Norman, T. L., Yeni, Y. N., Brown, C. U., and Wang, Z. (1998). "Influence of microdamage on fracture toughness of the human femur and tibia," *Bone* **23**, 303-306.
- Nyman, J. S., Reyes, M., and Wang, X. D. (2005). "Effect of ultrastructural changes on the toughness of bone," *Micron* **36**, 566-582.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., Dickson, G. R., and Lee, T. C. (2000). "Visualisation of three-dimensional microcracks in compact bone," *Journal of Anatomy* **197**, 413-420.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., and Lee, T. C. (2002). "An improved labelling technique for monitoring microcrack growth in compact bone," *Journal of Biomechanics* **35**, 523-526.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., and Lee, T. C. (2003). "Microcrack accumulation at different intervals during fatigue testing of compact bone," *Journal of Biomechanics* **36**, 973-980.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., and Lee, T. C. (2007). "Bone as a composite material: The role of osteons as barriers to crack growth in compact bone," *International Journal of Fatigue* **29**, 1051-1056.
- Olvera, D., Zimmermann, E. A., and Ritchie, R. O. (2011). "Mixed-mode toughness of human cortical bone containing a longitudinal crack in far-field compression," *Bone*.
- Parsamian, G. P., and Norman, T. L. (2001). "Diffuse damage accumulation in the fracture process zone of human cortical bone specimens and its influence on fracture toughness," *Journal of Materials Science: Materials in Medicine* **12**, 779-783.
- Pattin, C. A., Caler, W. E., and Carter, D. R. (1996). "Cyclic mechanical property degradation during fatigue loading of cortical bone," *Journal of Biomechanics* **29**, 69-79.
- Pereira, F., Morais, J., Dourado, N., de Moura, M., and Dias, M. (2011). "Fracture characterization of bone under mode II loading using the end loaded split test," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*.
- Peterlik, H., Roschger, P., Klaushofer, K., and Fratzl, P. (2005). "From brittle to ductile fracture of bone," *Nature materials* **5**, 52-55.

- Phelps, J., Hubbard, G., Wang, X., and Agrawal, C. (2000). "Microstructural heterogeneity and the fracture toughness of bone," *Journal of biomedical materials research* **51**, 735-741.
- Pidaparti, R., Akyuz, U., Naick, P., and Burr, D. (2000). "Fatigue data analysis of canine femurs under four-point bending," *Biomedical Materials and Engineering* **10**, 43-50.
- Plotkin, L. I., Weinstein, R. S., Parfitt, A. M., Roberson, P. K., Manolagas, S. C., and Bellido, T. (1999). "Prevention of osteocyte and osteoblast apoptosis by bisphosphonates and calcitonin," *Journal of Clinical Investigation* **104**, 1363-1374.
- Reifsnider, K. L., and Jamison, R. (1982). "Fracture of fatigue-loaded composite laminates," *International Journal of Fatigue* **4**, 187-197.
- Reilly, G. C., and Currey, J. D. (1999). "The development of microcracking and failure in bone depends on the loading mode to which it is adapted," *Journal of experimental biology* **202**, 543-552.
- Renaud, G., Calle, S., Remenieras, J. P., and Defontaine, M. (2008). "Non-linear acoustic measurements to assess crack density in trabecular bone," *International Journal of Non-Linear Mechanics* **43**, 194-200.
- Rho, J. Y., Kuhn-Spearing, L., and Zioupos, P. (1998). "Mechanical properties and the hierarchical structure of bone," *Medical engineering & physics* **20**, 92-102.
- Ritchie, R., Koester, K., Ionova, S., Yao, W., Lane, N., and Ager III, J. (2008). "Measurement of the toughness of bone: a tutorial with special reference to small animal studies," *Bone* **43**, 798-812.
- Ritchie, R. O., Buehler, M. J., and Hansma, P. (2009). "Plasticity and toughness in bone," *Phys. Today* **62**, 41-47.
- Russell, R. G. G., Watts, N., Ebetino, F., and Rogers, M. (2008). "Mechanisms of action of bisphosphonates: similarities and differences and their potential influence on clinical efficacy," *Osteoporosis international* **19**, 733-759.
- Saito, M., and Marumo, K. (2010). "Collagen cross-links as a determinant of bone quality: a possible explanation for bone fragility in aging, osteoporosis, and diabetes mellitus," *Osteoporosis international* **21**, 195-214.
- Schaffler, M., Pitchford, W., Choi, K., and Riddle, J. (1994). "Examination of compact bone microdamage using back-scattered electron microscopy," *Bone* **15**, 483-488.
- Schaffler, M. B., Choi, K., and Milgrom, C. (1995). "Aging and matrix microdamage accumulation in human compact bone," *Bone* **17**, 521-525.
- Schaffler, M. B., Radin, E. L., and Burr, D. B. (1989). "Mechanical and Morphological Effects of Strain Rate on Fatigue of Compact-Bone," *Bone* **10**, 207-214.
- Schaffler, M. B., Radin, E. L., and Burr, D. B. (1990). "Long-Term Fatigue Behavior of Compact-Bone at Low Strain Magnitude and Rate," *Bone* **11**, 321-326.
- Seeman, E., and Delmas, P. D. (2006). "Bone quality—the material and structural basis of bone strength and fragility," *New England Journal of Medicine* **354**, 2250-2261.
- Shane, E., Burr, D., Ebeling, P. R., Abrahamsen, B., Adler, R. A., Brown, T. D., Cheung, A. M., Cosman, F., Curtis, J. R., and Dell, R. (2010). "Atypical subtrochanteric and diaphyseal femoral fractures: report of a task force of the American Society for Bone and Mineral Research," *Journal of Bone and Mineral Research* **25**, 2267-2294.
- Smith, S., Recker, R., Hannan, M., Müller, R., and Baus, F. (2003). "Intermittent intravenous administration of the bisphosphonate ibandronate prevents bone loss and maintains bone strength and quality in ovariectomized cynomolgus monkeys," *Bone* **32**, 45-55.
- Sobelman, O. S., Gibeling, J. C., Stover, S. M., Hazelwood, S. J., Yeh, O. C., Shelton, D. R., and Martin, R. B. (2004). "Do microcracks decrease or increase fatigue resistance in cortical bone?," *Journal of Biomechanics* **37**, 1295-1303.

- Stepan, J. J., Burr, D. B., Pavo, I., Sipos, A., Michalska, D., Li, J., Fahrleitner-Pammer, A., Petto, H., Westmore, M., and Michalsky, D. (2007). "Low bone mineral density is associated with bone microdamage accumulation in postmenopausal women with osteoporosis," *Bone* **41**, 378-385.
- Tai, K., Ulm, F. J., and Ortiz, C. (2006). "Nanogranular origins of the strength of bone," *Nano letters* **6**, 2520-2525.
- Tang, S., Allen, M., Phipps, R., Burr, D., and Vashishth, D. (2009). "Changes in non-enzymatic glycation and its association with altered mechanical properties following 1-year treatment with risedronate or alendronate," *Osteoporosis international* **20**, 887-894.
- Tang, S. Y., and Vashishth, D. (2007). "A non-invasive in vitro technique for the three-dimensional quantification of microdamage in trabecular bone," *Bone* **40**, 1259-1264.
- Turner, P. J., Wyss, P., Voide, R., Stauber, M., Stampanoni, M., Sennhauser, U., and Müller, R. (2006). "Time-lapsed investigation of three-dimensional failure and damage accumulation in trabecular bone using synchrotron light," *Bone* **39**, 289-299.
- Turnbull, T. L., Gargac, J. A., Niebur, G. L., and Roeder, R. K. (2011). "Detection of fatigue microdamage in whole rat femora using contrast-enhanced micro-computed tomography," *Journal of biomechanics*.
- Ulrich, T. J., Johnson, P. A., Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., and Laugier, P. (2007). "Application of nonlinear dynamics to monitoring progressive fatigue damage in human cortical bone," *Applied Physics Letters* **91**.
- Ural, A., Zioupos, P., Buchanan, D., and Vashishth, D. (2011). "The effect of strain rate on fracture toughness of human cortical bone: A finite element study," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*.
- Vashishth, D. (2004). "Rising crack-growth-resistance behavior in cortical bone: implications for toughness measurements," *Journal of Biomechanics* **37**, 943-946.
- Vashishth, D., Behiri, J., and Bonfield, W. (1997). "Crack growth resistance in cortical bone: concept of microcrack toughening," *Journal of biomechanics* **30**, 763-769.
- Vashishth, D., Verborgt, O., Divine, G., Schaffler, M. B., and Fyhrie, D. P. (2000). "Decline in osteocyte lacunar density in human cortical bone is associated with accumulation of microcracks with age," *Bone* **26**, 375-380.
- Verborgt, O., Gibson, G. J., and Schaffler, M. B. (2000). "Loss of osteocyte integrity in association with microdamage and bone remodeling after fatigue in vivo," *Journal of Bone and Mineral Research* **15**, 60-67.
- Voide, R., Schneider, P., Stauber, M., van Lenthe, G., Stampanoni, M., and Müller, R. (2011). "The importance of murine cortical bone microstructure for microcrack initiation and propagation," *Bone*.
- Voide, R., Schneider, P., Stauber, M., Wyss, P., Stampanoni, M., Sennhauser, U., van Lenthe, G. H., and Müller, R. (2009). "Time-lapsed assessment of microcrack initiation and propagation in murine cortical bone at submicrometer resolution," *Bone* **45**, 164-173.
- Wagermaier, W., S. Gupta, H., Gourrier, A., Burghammer, M., Roschger, P., and Fratzl, P. (2006). "Spiral twisting of fiber orientation inside bone lamellae," *Biointerphases* **1**, 1-5.
- Waldorff, E. I., Goldstein, S. A., and McCreadie, B. R. (2007). "Age-dependent microdamage removal following mechanically induced microdamage in trabecular bone in vivo," *Bone* **40**, 425-432.
- Wang, X., Shen, X., Li, X., and Mauli Agrawal, C. (2002). "Age-related changes in the collagen network and toughness of bone," *Bone* **31**, 1-7.

- Wasserman, N., Brydges, B., Searles, S., and Akkus, O. (2008). "In vivo linear microcracks of human femoral cortical bone remain parallel to osteons during aging," *Bone* **43**, 856-861.
- Weiner, S., and Wagner, H. D. (1998). "The material bone: structure-mechanical function relations," *Annual Review of Materials Science* **28**, 271-298.
- Winwood, K., Zioupos, P., Currey, J. D., Cotton, J. R., and Taylors, M. (2006). "Strain patterns during tensile, compressive, and shear fatigue of human cortical bone and implications for bone biomechanics," *Journal of Biomedical Materials Research Part A* **79A**, 289-297.
- Yan, J., Mecholsky, J. J., and Clifton, K. B. (2007). "How tough is bone? Application of elastic-plastic fracture mechanics to bone," *Bone* **40**, 479-484.
- Yeni, Y., Brown, C., and Norman, T. (1998). "Influence of bone composition and apparent density on fracture toughness of the human femur and tibia," *Bone* **22**, 79-84.
- Yeni, Y. N., Brown, C. U., Wang, Z., and Norman, T. L. (1997). "The influence of bone morphology on fracture toughness of the human femur and tibia," *Bone* **21**, 453-459.
- Yeni, Y. N., and Fyhrie, D. P. (2002). "Fatigue damage-fracture mechanics interaction in cortical bone," *Bone* **30**, 509-514.
- Zebaze, R., Ghasem-Zadeh, A., Bohte, A., Iuliano-Burns, S., Mirams, M., Price, R. I., Mackie, E. J., and Seeman, E. (2010). "Intracortical remodelling and porosity in the distal radius and post-mortem femurs of women: a cross-sectional study," *The Lancet* **375**, 1729-1736.
- Zhang, Z., Ross, R. D., and Roeder, R. K. (2010). "Preparation of functionalized gold nanoparticles as a targeted X-ray contrast agent for damaged bone tissue," *Nanoscale* **2**, 582-586.
- Zimmermann, E. A., Launey, M. E., and Ritchie, R. O. (2010). "The significance of crack-resistance curves to the mixed-mode fracture toughness of human cortical bone," *Biomaterials* **31**, 5297-5305.
- Zimmermann, E. A., Schaible, E., Bale, H., Barth, H. D., Tang, S. Y., Reichert, P., Busse, B., Alliston, T., Ager, J. W., and Ritchie, R. O. (2011). "Age-related changes in the plasticity and toughness of human cortical bone at multiple length scales," *Proceedings of the National Academy of Sciences* **108**, 14416-14421.
- Zioupos, P. (2001). "Accumulation of in-vivo fatigue microdamage and its relation to biomechanical properties in ageing human cortical bone," *Journal of Microscopy-Oxford* **201**, 270-278.
- Zioupos, P., and Currey, J. (1998). "Changes in the stiffness, strength, and toughness of human cortical bone with age," *Bone* **22**, 57-66.
- Zioupos, P., Currey, J. D., and Sedman, A. J. (1994). "An examination of the micromechanics of failure of bone and antler by acoustic emission tests and Laser Scanning Confocal Microscopy," *Medical Engineering & Physics* **16**, 203-212.
- Zioupos, P., Hansen, U., and Currey, J. D. (2008). "Microcracking damage and the fracture process in relation to strain rate in human cortical bone tensile failure," *Journal of biomechanics* **41**, 2932-2939.
- Zioupos, P., Wang, X. T., and Currey, J. D. (1996). "The accumulation of fatigue microdamage in human cortical bone of two different ages in vitro," *Clinical Biomechanics* **11**, 365-375.

Chapitre 2.

L'ACOUSTIQUE NON-LINEAIRE NON CLASSIQUE DANS LES SOLIDES : DES ROCHES AUX METAUX POLYCRISTALLINS

D'après les quelques observations expérimentales publiées sur le comportement non-linéaire (NL) de l'os cortical humain (Muller *et al.*, 2008) ou bovin (Muller *et al.*, 2005; Muller *et al.*, 2006), le tissu osseux compact aurait un comportement non-linéaire non classique de type hystérétique. Le comportement non-linéaire augmente avec l'état d'endommagement de l'os. Ce comportement, commun à de nombreux matériaux, est la manifestation de phénomènes encore mal compris.

L'élasticité non-linéaire correspond à une relation non proportionnelle entre la contrainte et la déformation, c'est-à-dire que le module élastique du matériau dépend de la déformation (ou contrainte) appliquée. L'élasticité non-linéaire classique est inhérente à la structure atomique du matériau. En effet, pour de grandes déformations, quand un atome est déplacé de sa position d'équilibre, la force de rappel qui lui est appliquée n'est pas proportionnelle à son déplacement. Cette non-linéarité a été décrite mathématiquement par Landau en développant le module élastique en série de Taylor (Landau and Lifshitz, 1986) en fonction de la déformation. Pour un matériau isotrope, l'élasticité peut ainsi être caractérisée du point de vue de la densité d'énergie, par deux constantes élastiques du deuxième ordre (termes linéaires comme le module d'Young et le module de cisaillement par exemple) et par trois constantes élastiques du troisième ordre (termes non-linéaires nommés A, B, C (Landau and Lifshitz, 1986)).

L'élasticité non-linéaire non classique dans les solides se manifeste via des phénomènes que la théorie non-linéaire classique de Landau et Lifshitz ne peut pas décrire. On parle aussi d'élasticité hystérétique car la relation contrainte/déformation possède une boucle d'hystérésis, c'est-à-dire que le chemin est différent suivant le sens d'application de la contrainte (ou déformation). En chaque extrémité se trouve un point de rebroussement qui

distingue la boucle de l'hystérésis élastique de celle, de forme elliptique, caractéristique des viscoélastiques (Fig.6).

L'acoustique permet de sonder les propriétés élastiques non linéaires non classiques des matériaux de manière dynamique et non destructive, en particulier lors d'une expérience de mise en résonance (Johnson *et al.*, 1996). Dans ce cas, l'élasticité non-linéaire hystérétique se manifeste clairement par la double dépendance en amplitude de l'atténuation et du module élastique, ce qui se traduit par un décalage de la fréquence de résonance et une augmentation de la dissipation d'énergie (Fig.1). Les matériaux non-linéaires non classiques peuvent aussi présenter d'autres phénomènes atypiques tels que la prédominance des harmoniques impaires en réponse à une excitation monochromatique, les effets de dynamique lente après conditionnement du matériau, ou bien la relaxation non-linéaire.

Un tour d'horizon de la littérature permet de se rendre compte que l'élasticité non-linéaire non classique est présente dans un large spectre de matériaux, allant des roches (Johnson *et al.*, 1996) aux métaux monocristallins (Read, 1940). De manière surprenante, les différentes communautés travaillant chacune sur une classe particulière de matériaux (roches, matériaux granulaires, métaux polycristallins) font rarement état des expériences et des résultats obtenus dans les autres classes de matériaux. Or la dépendance en amplitude de l'atténuation et du module élastique est présente dans toutes ces classes de matériaux et les techniques d'investigation sont souvent très proches, basées sur la résonance du matériau (*Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy* (NRUS) (Nazarov, 1991b; Johnson *et al.*, 1996; Van den Abeele *et al.*, 2000c); *Piezoelectric Ultrasonic Composite Oscillator Technique* (PUCOT) (Quimby, 1925; Marx, 1951; Robinson *et al.*, 1974; Kustov *et al.*, 2006).

Ce chapitre s'appuie sur une revue de la littérature concernant l'élasticité non linéaire non classique dans les solides. Nous passerons en revue les différentes classes de matériaux qui présentent un comportement non linéaire non classique. Nous nous focaliserons sur leurs similitudes et nous tenterons de dégager des tendances communes. Nous ferons une synthèse des différentes origines possibles de ce comportement sur lesquelles il n'existe pas de consensus à l'heure actuelle. Dans une seconde partie, nous comparerons trois modèles proposés pour décrire les données expérimentales (Granato-Lücke, Davidenkov et l'Espace de Preisach-Mayergoyz). Nous nous focaliserons sur les types d'hystérésis (élastique, inélastique, (as)symétrie), ainsi que sur la proportionnalité entre les dépendances en amplitude de l'atténuation et du module élastique caractérisée par le rapport de Read (Read, 1940)).

Enfin dans la dernière partie, nous discuterons de la dépendance des non-linéarités élastique et dissipative à la fréquence d'excitation, à la température, au seuil de déformation ou bien à la présence d'un fluide. A partir de l'observation expérimentale de ces dépendances, de nouveaux modèles ont fait leur apparition permettant de mieux comprendre les mécanismes d'activation et de relaxation des éléments hystérétiques inclus dans les matériaux. Nous présenterons en particulier le rôle que le conditionnement du matériau peut jouer dans le comportement non-linéaire.

2.1 Les matériaux non-linéaires non classiques : des roches aux métaux

2.1.1 Les matériaux non-linéaires élastiques mésoscopiques (roches, matériaux granulaires et solides fissurés)

Dans les années 1980, une nouvelle classe de matériaux a été découverte en observant des phénomènes élastiques inédits dans les roches [dans deux laboratoires indépendants, le Laboratoire National de Los Alamos aux Etats Unis et à l'Institut de Physique Appliquée de Nizhni Novogorod en Russie (Ostrovsky *et al.*, 2005)]. Ces roches présentent une forte élasticité hystérétique dynamique ainsi qu'un effet de mémoire discrète [en anglais « *end-point memory* » ou « *discrete memory* »] aussi appelé dynamique lente ou conditionnement [en anglais « *slow dynamic* » ou « *conditioning effect* »] sous l'application de déformations inférieures à la limite élastique des matériaux (TenCate and Shankland, 1996; Pasqualini *et al.*, 2007; Guyer and Johnson, 2009; Tencate, 2011). Ces phénomènes ne pouvaient pas être expliqués par la théorie non-linéaire classique de Landau et Lifschitz basée sur les interactions interatomiques à l'échelle nanoscopique (Zarembo and Krasilni.Va, 1971; Ostrovsky *et al.*, 1978). En effet, le comportement hystérétique des roches est généralement interprété à l'échelle mésoscopique comme étant la conséquence de frictions internes non-linéaires entre les joints de grains. Pour cette raison, cette classe de matériaux est communément appelée : matériau non-linéaire élastique mésoscopique [en anglais « *Nonlinear Mesoscopic Elastic (NME) materials* »]. De nombreuses études décrivent ce phénomène dans des roches aussi différentes que les grès (Fig.1a), les roches calcaires ou les granites (Johnson *et al.*, 1996; Johnson and Sutin, 2005) et de manière générale dans les milieux granulaires consolidés comme le béton (Van den Abeele and De Visscher, 2000; Lacouture *et al.*, 2003; Payan *et al.*, 2007) ou non consolidés comme les assemblages de billes (Johnson and Jia, 2005; Inserra *et al.*, 2008). En parallèle, il a été montré que les matériaux endommagés [composites (Fig.1c) (Van den Abeele *et al.*, 2001; Bentahar and El Guerjouma, 2009), béton (Van den Abeele and

De Visscher, 2000; Bentahar *et al.*, 2006), ardoises (Fig.1d) (Van Den Abeele *et al.*, 2001), métaux (Van Den Abeele *et al.*, 2002a), os cortical (Fig.1b) (Muller *et al.*, 2005; Muller *et al.*, 2006; Muller *et al.*, 2008) ou os trabéculaire (Renaud *et al.*, 2008; Moreschi *et al.*, 2011)] ayant des défauts de taille micro ou mésoscopique (microfissures, délaminations...) manifestaient le même type d'élasticité non-linéaire que les matériaux NME.

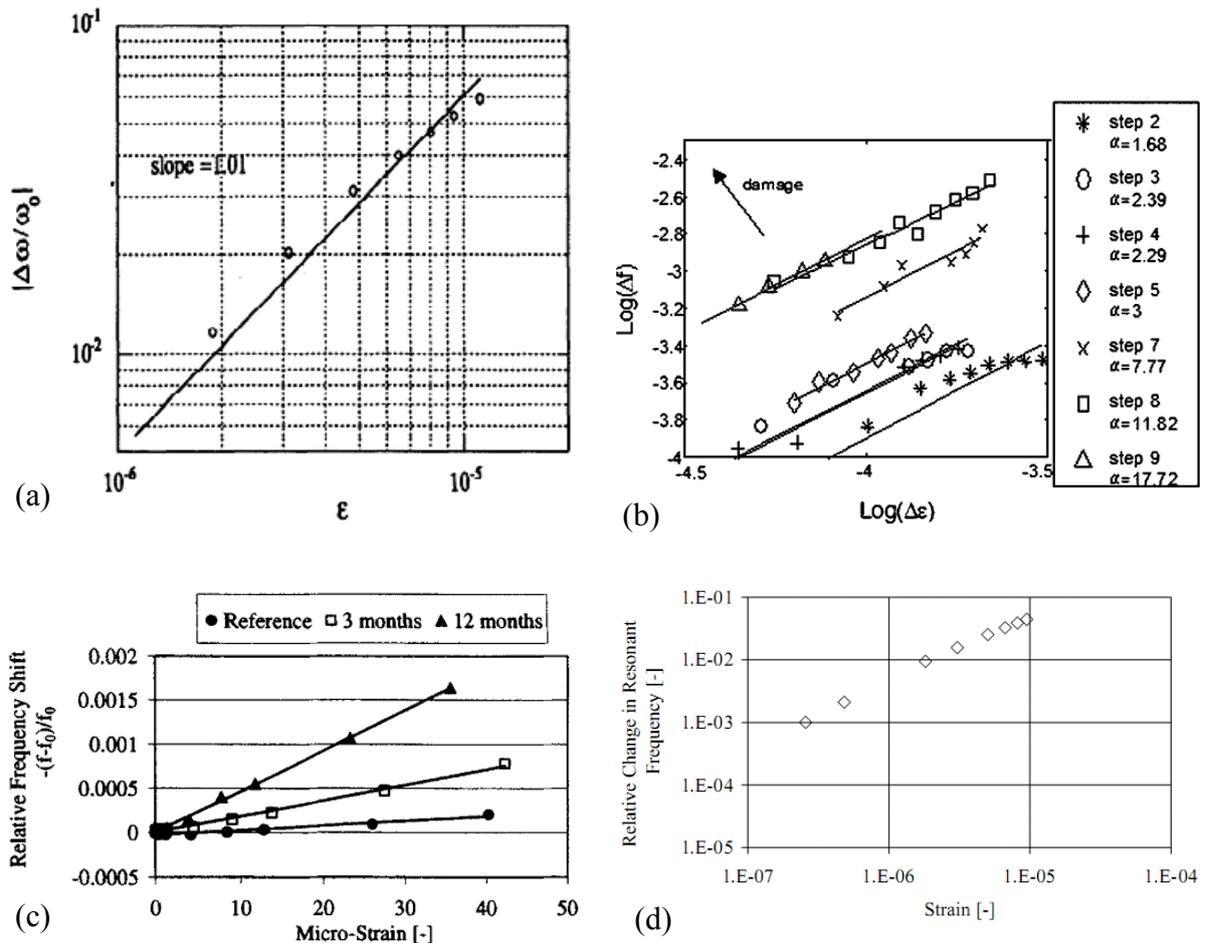


Figure 1 : Exemple de décalage en fréquence pour différents types de matériaux non-linéaire non classique (NME) : (a) Grès de Fontainebleau (Johnson *et al.*, 1996); (b) Os bovin endommagé progressivement en compression (Muller *et al.*, 2005); (c) Matériau composite endommagé par traitement chimique prolongé (Van den Abeele *et al.*, 2001); (d) Tuile en ardoise endommagée (Van Den Abeele *et al.*, 2001)

Comme le comportement élastique non linéaire non classique des NME reste mal compris du point de vue des mécanismes physiques mis en jeu, il est généralement décrit à l'aide de modèles phénoménologiques multi-échelles s'appuyant par exemple sur l'espace de Preisach-Mayergoyz [en anglais « *PM-space* »]. Le *PM-Space* a l'avantage de pouvoir décrire les comportements non-linéaires classique et hystérétique des matériaux de la classe des NME (Holcomb, 1981; McCall and Guyer, 1994; Guyer *et al.*, 1995; McCall and Guyer, 1996;

Capogrosso-Sansone and Guyer, 2002). Ce modèle a été récemment affiné pour inclure les effets de *non-équilibre* tels que le conditionnement, les effets de mémoire discrète ou la relaxation, lorsque le matériau est excité à une amplitude constante (Scalerandi *et al.*, 2010). Il existe cependant d'autres approches basées sur les micro-mécanismes physiques suspectés d'être à l'origine de l'hystérésis (Aleshin and Van den Abeele, 2007; Aleshin and Van Den Abeele, 2007). Lorsque ces mécanismes font intervenir deux surfaces faiblement liées ou adhérentes, on parle d'acoustique non-linéaire du contact [en anglais « *Contact Acoustics Nonlinearity* » (*CAN*)] (Solodov *et al.*, 2006). Le premier mécanisme invoqué est basé sur le frottement ou le glissement hystérétique entre les joints de grains ou les bords des microfissures (Walsh, 1966; Aleshin and Van den Abeele, 2007). Plus tard, l'introduction d'adhésion hystérétique entre des surfaces rugueuses sans friction possible (Sharma and Tutuncu, 1994; Pecorari, 2004) a permis de prendre en compte l'observation de non-linéarités hystérétiques pour de faibles déformations ($<10^{-5}$), impossible à expliquer par les mécanismes de frictions hystérétiques. Une seconde approche, plus particulièrement adaptée aux matériaux fissurés, est basée sur le phénomène de clappement des lèvres de la microfissure au passage d'une onde. La microfissure se comporterait comme une « diode mécanique » ne laissant passer les ondes qu'en phase de compression, les ondes en phase d'extension ne pouvant pas traverser la microfissure ouverte (Solodov, 1998; Solodov *et al.*, 2002; Solodov *et al.*, 2006). Enfin une autre approche consiste à considérer les matériaux comme des paquets de grains sphériques. Cette représentation est particulièrement intéressante pour les milieux granulaires consolidés (Nihei *et al.*, 2000) ou non consolidés (Tournat and Gusev, 2010; Jia *et al.*, 2011). Cette dernière approche est basée sur le modèle Hertz-Mindlin (Mindlin and Deresiewicz, 1953) qui combine les mécanismes d'adhésion [en anglais « *stick* »] et de glissement [en anglais « *slip* »] entre deux sphères en contact en ajoutant au modèle de Hertz une force tangentielle.

L'évaluation des propriétés non-linéaires des matériaux NME est réalisée par des techniques que l'on regroupe sous le terme de *Nonlinear Elastic Wave Spectroscopy* (NEWS) (Guyer and Johnson, 1999; Johnson, 1999). Parmi les techniques NEWS, on retrouve des mesures basées sur le mélange de fréquences (« *Nonlinear Wave Modulation Spectroscopy* » (NWMS) (Van den Abeele *et al.*, 2000c)) ou sur les caractéristiques du pic de résonance du matériau (« *Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy* » (NRUS) (Van den Abeele *et al.*, 2000b)). La méthode NRUS mesure spécifiquement le décalage en fréquence ainsi que la variation de l'atténuation pour des niveaux croissants de déformation. Au niveau le plus

faible, l'élasticité du matériau est considérée comme linéaire et donc indépendante de la déformation.

2.1.2 Les métaux mono et polycristallins (métaux et alliages métalliques)

Souvent considérés comme n'ayant pas de propriétés non-linéaires hystérétiques, les matériaux mono et polycristallins tels que le cuivre, l'aluminium ou l'acier sont généralement utilisés comme des matériaux étalons pour calibrer la linéarité des nouveaux dispositifs expérimentaux par la communauté des chercheurs travaillant sur les NME (Johnson *et al.*, 1996; Guyer and Johnson, 1999; Johnson *et al.*, 2004; Johnson and Sutin, 2005; Scalerandi *et al.*, 2010). Pourtant, il existe un large champ d'études concernant les métaux mono ou polycristallins, purs ou sous forme d'alliage, dont la principale caractéristique est de présenter une dépendance en amplitude du facteur de perte, souvent appelée dépendance en amplitude des frictions internes [en anglais « *amplitude dependent internal friction (ADIF)* »]. Bien que les auteurs se focalisent principalement sur l'ADIF, ces matériaux présentent aussi une dépendance en amplitude du module élastique [en anglais « *amplitude dependent modulus defect (ADMD)* »]. Les phénomènes d'ADIF et l'ADMD ont été très largement étudiés dans le zinc (Read, 1940; Nazarov and Kolpakov, 2000), le cuivre (Nowick, 1950), le plomb (Mason, 1956; Nazarov, 1999), les alliages de cuivre (e.g. Cu-Ni (Kustov *et al.*, 1999) (voir Fig.9), les métaux alcalins comme le lithium et le sodium (Lebedev and Kustov, 1989) et les composites à matrices métalliques [en anglais « *metal matrix composites (MMC)* »], comme par exemple les MMC à base d'aluminium (Kustov *et al.*, 2001). On peut se reporter aux revues de Zhang et Lebedev (Zhang *et al.*, 1994; Lebedev, 1999), pour une large gamme de températures (de 8°K à 700°K) ainsi qu'une large gamme de fréquences (du millihertz au megaHertz). Les deux principaux mécanismes expliquant la dissipation (ADIF) et l'élasticité (ADMD) non-linéaires sont les dislocations locales [en anglais « *local dislocations breakaway* »] décrites par la théorie de Granato-Lücke (G-L) (Granato and Lucke, 1956) et les frictions non localisées ou diffuses, aussi appelées micro-plasticité, décrites par la représentation de Davidenkov (Davidenkov, 1938). Comme ces deux mécanismes sont basés sur les phénomènes liés aux dislocations, l'origine de l'élasticité hystérétique a lieu préférentiellement à l'échelle nanoscopique. Les mesures d'ADIF et d'ADMD sont réalisées à l'aide d'une technique appelée « *Piezoelectric Ultrasonic Composite Oscillator Technique (PUCOT)* » (Quimby, 1925; Marx, 1951; Robinson *et al.*, 1974; Kustov *et al.*, 2006). Cette technique est très similaire à la méthode NRUS, les caractéristiques de l'élasticité non-linéaire des matériaux étant aussi évaluées en résonance.

2.1.3 Les matériaux à bandes de kinking

Il existe enfin une classe de matériaux incluant des constituants de base des roches et certains métaux. Ce sont les solides à bandes d'entortillement [en anglais « *kink* »]. Ils possèdent une élasticité non-linéaire appelée « *kinking nonlinear elasticity (KNE)* » car le mécanisme hystérétique est principalement dû à la formation de bandes d'entortillement naissantes [en anglais « *incipient kink bands (IKB)* »] (type de déformation ayant lieu à l'échelle microscopique dans un monocristal et dans lequel l'orientation cristalline est modifiée par le glissement de plusieurs plans cristallins parallèles (Orowan, 1942)). Ces matériaux ont été étudiés principalement dans des conditions quasi-statiques (millihertz à hertz) à fort niveau de contrainte ou de déformation ($\epsilon > 10^{-5}$). L'hystérésis présente dans la courbe contrainte/déformation est attribuée aux IKBs (Barsoum *et al.*, 2003; Barsoum *et al.*, 2005b). Quelques expériences menées à plus haute fréquence (kilohertz) et faible niveau de déformation ($\epsilon < 10^{-4}$) ont montré des résultats similaires à ceux obtenus pour les matériaux NME et les métaux polycristallins (Barsoum *et al.*, 2005a; Finkel *et al.*, 2009) (Fig.2), avec une dépendance en amplitude du module élastique et de l'atténuation.

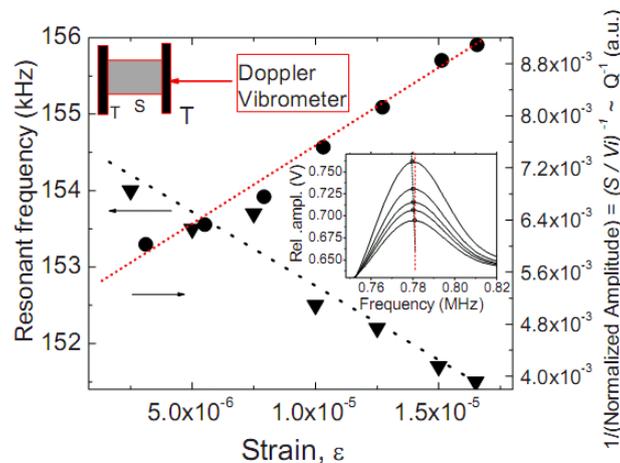


Figure 2 : Décalage en fréquence et variation de l'atténuation pour un matériau MAX phase (Ti_3AlC_2). L'insertion à gauche montre le dispositif expérimental NRUS (appelé MRUS « *Multiple Resonance Ultrasound Spectroscopy* » par Finkel). T correspond au transducteur et S à l'échantillon. L'insertion à droite montre le spectre de la résonance à différents niveaux d'excitation. Extrait de (Finkel *et al.*, 2009)

Barsoum et Finkel supposent qu'à haute fréquence et faible déformation, la formation d'IKBs est impossible et que la non-linéarité hystérétiques proviendraient uniquement des dislocations déjà présentes. Les solides KNE incluent les silicates dont le mica, le quartz et les feldspaths (composants de base de beaucoup de roches telles que le granite et le grès), les matériaux MAX phases (Barsoum, 2004) (voir Fig.3b leur nature nano-stratifiée) et les

métaux à symétrie hexagonale à face centrée [en anglais « *hexagonal closed pack* » (HCP)] comme le zinc, le graphite et le magnésium. Une condition suffisante pour appartenir à la classe des solides KNE est d'avoir une anisotropie plastique qui implique pour les solides HCP d'avoir un rapport $c/a > 1.6$, c et a étant les deux dimensions du réseau cristallin (Kalidindi *et al.*, 2006) (Fig.3a).

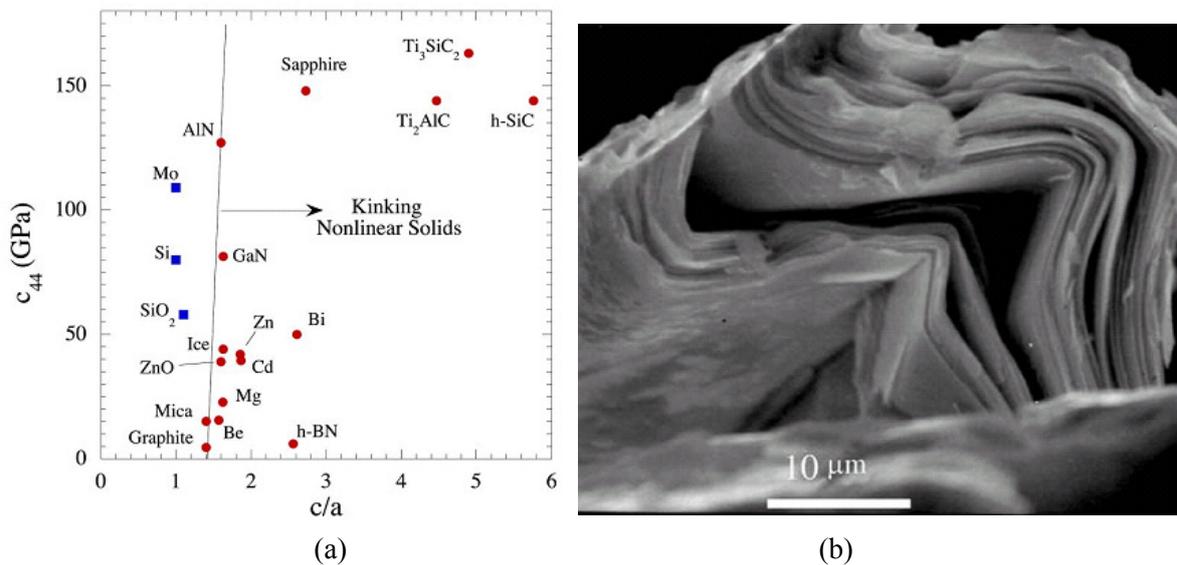


Figure 3 : (a) Coefficient élastique c_{44} en fonction du rapport c/a pour les solides non-KNE (carrés pleins) et les solides KNE connus ou suspectés (cercles pleins). Les matériaux à droite de la ligne verticale devraient faire partie de la classe des KNE d'après Barsoum (Barsoum *et al.*, 2005b) ; (b) Exemple de la structures nanostratifiée des matériaux MAX phases (ici c'est un Ti₃SiC₂). Extrait de (Barsoum, 2004)

Quelques matériaux de type KNE (e.g. mica) sont des composants des matériaux de types NME (e.g. le gré), ce qui laisse suggérer à Barsoum *et al* (Barsoum *et al.*, 2004; Barsoum *et al.*, 2005a) que le comportement hystérétique de la plupart des solides NME est dû à la présence de phases KNE. Bien que la classe des solides de type KNE englobe un large spectre de matériaux et d'états, les métaux ayant une structure cristalline cubique face centrée (CFC) comme le cuivre, le nickel ou l'aluminium n'en font pas partie. Ce classement sera peut-être remis en cause par l'observation récente de bandes de kinking dans un monocristal d'aluminium (Patil *et al.*, 2009).

2.2 Elasticité hystérétique dynamique

2.2.1 Différents modèles phénoménologiques

Les premières observations expérimentales de non-linéarité élastique hystérétiques ont commencé, juste avant le début de la seconde guerre mondiale. On peut sans doute les

attribuer à Read qui suggère pour la première fois le rôle majeur des dislocations dans l'élasticité hystérétique dynamique, après avoir observé une dépendance en amplitude des frictions internes (ADIF) et du module (ADMD) dans des échantillons de cuivre et de zinc monocristallins (Read, 1940; Read, 1941). Ce n'est que plus tard, que Granato et Lüke (Granato and Lüke, 1956) ont proposé le premier modèle permettant de décrire l'atténuation non-linéaire dans les matériaux monocristallins par la présence de dislocations et plus spécifiquement des défauts ponctuels [en anglais « *point defects* »]. Ils ont introduit une hystérésis dans la relation contrainte/déformation avec une force de rappel linéaire (Fig.4).

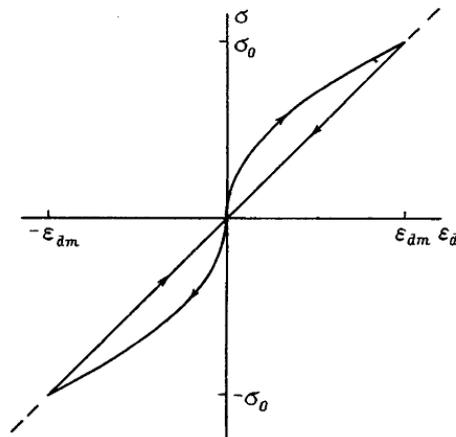


Figure 4 : Représentation schématique de la relation hystérétique contrainte (σ) –déformation (ε) avec une force de rappel linéaire. ε_{dm} correspond à la déformation de la dislocation. Extrait de (Lebedev, 1999).

Le mécanisme hystérétique prévoit que lorsque la déformation appliquée est suffisante pour induire le décrochage (en anglais « *breakaway* ») ou l'épinglage (en anglais « *repinning* ») d'atomes au niveau de défauts ponctuels, la mobilité de la dislocation augmente subitement, provoquant le glissement d'un plan atomique. Les défauts ponctuels sont représentés par la vacance ou bien la présence d'un ou plusieurs atomes interstitiels (« nuage de Cottrell ») (Fig.5).

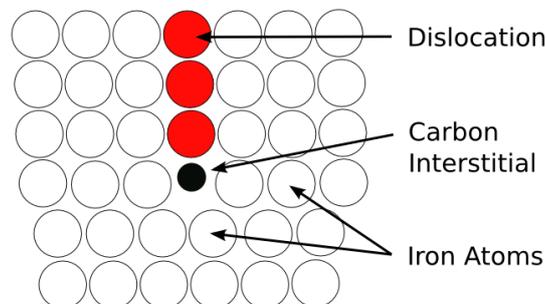


Figure 5 : Exemple d'une dislocation engendrée par la présence d'un atome interstitiel décalant la structure cristalline du matériau (source Wikipédia : <http://en.wikipedia.org/wiki/Image:Cottrellatmosphere.png>).

Plus récemment, Nazarov a adapté le model de Granato-Lücke (GL) pour interpoler les données expérimentales qu'il a obtenues sur différents métaux polycristallins comme le cuivre (Nazarov *et al.*, 1988; Nazarov, 1991a), le plomb (Nazarov, 1999) et le zinc (Nazarov and Kolpakov, 2000; Nazarov, 2001b). Son modèle est plus souple car il autorise une force de rappel non-linéaire. L'équation généralisée du modèle GL devient (Nazarov *et al.*, 2009):

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = K_0[\varepsilon - \varepsilon_h(\varepsilon, \dot{\varepsilon})] \quad (2.1)$$

$$\varepsilon_h(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = \frac{1}{m} \begin{cases} \gamma_1 \varepsilon^m, & \varepsilon > 0 \text{ and } \dot{\varepsilon} > 0 \\ -\gamma_2 \varepsilon^m + (\gamma_1 + \gamma_2) \Delta \varepsilon^{m-1} \varepsilon, & \varepsilon > 0 \text{ and } \dot{\varepsilon} < 0 \\ -\gamma_3 \varepsilon^m, & \varepsilon < 0 \text{ and } \dot{\varepsilon} > 0 \\ -\gamma_3 \varepsilon^m + (-1)^n (\gamma_3 + \gamma_4) \Delta \varepsilon^{m-1} \varepsilon, & \varepsilon < 0 \text{ and } \dot{\varepsilon} < 0 \end{cases} \quad (2.2)$$

où K_0 , σ , ε , $\dot{\varepsilon}$, ε_h and $\Delta \varepsilon$ sont respectivement le module élastique linéaire, la contrainte, la déformation, la dérivé temporelle de la déformation (i.e. vitesse de déformation), la déformation hystérétique et le maximum de déformation au cours d'un cycle (i.e. l'amplitude de l'onde acoustique). L'exposant m (nombre réel) définit la loi de puissance reliant la déformation ε à la contrainte σ . Les paramètres γ_1 , γ_2 , γ_3 et γ_4 décrivent la non-linéarité hystérétique. En particulier, si $\gamma_1 = -\gamma_2$ et $\gamma_3 = -\gamma_4$, le système n'est plus hystérétique mais suis un comportement élastique non-linéaire classique décrit par les cinq constantes de la théorie de l'élasticité de Landau et Lifschitz (Landau and Lifshitz, 1986). D'autre part, nous retrouvons le modèle GL conventionnel quand $\gamma_2 = \gamma_4 = 0$ et $\gamma_1 \neq 0$, $\gamma_3 \neq 0$. Par conséquence, la dépendance en amplitude de l'atténuation (ou décrétement δ) et de la variation du module ($\Delta K/K_0$) est proportionnelle à $\Delta \varepsilon^n$, où $n = m - 1$.

Dans le cas simple d'une dépendance quadratique ($m=2$) entre la déformation et la contrainte, il est possible d'extraire deux paramètres non-linéaires θ_f and θ_Q associés respectivement au décalage de la fréquence de résonance (proportionnelle à la réduction du module) et à l'augmentation de l'atténuation (ou la diminution du facteur de qualité Q) en fonction de la déformation. Notons que par abus de langage, nous utiliserons dans tout le manuscrit, le terme d'atténuation pour parler du taux d'amortissement (ζ) [en anglais « *Damping Ratio* »]. Le taux d'amortissement ζ aussi appelé facteur de dissipation est inversement proportionnel au facteur de qualité Q et proportionnel au décrétement logarithmique δ :

$$\zeta = \frac{1}{2Q} = \frac{\delta}{2\pi} \quad (2.3)$$

Expérimentalement, l'extraction deux paramètres non-linéaires θ_f and θ_Q se fait à partir de la pente de la courbe ADIF et de la courbe ADMD :

$$\frac{\Delta K}{K_0} = 2 * \frac{\Delta f}{f_0} = -\frac{4}{3\pi} \theta_f * \Delta \varepsilon ,$$

$$\text{avec } \theta_f = \frac{2}{3\pi} (\gamma_1 - \gamma_2 + \gamma_3 - \gamma_4) + \frac{1}{4} (\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3 + \gamma_4) \quad (2.4)$$

$$\Delta \delta = \pi(Q^{-1} - Q_0^{-1}) = \frac{4}{3} \theta_Q * \Delta \varepsilon, \text{ avec } \theta_Q = \frac{1}{6\pi} (\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3 + \gamma_4) \quad (2.5)$$

Parallèlement au modèle GL, aussi appelé le *breakaway model*, plusieurs auteurs (Asano, 1970; Lebedev, 1999; Nazarov *et al.*, 2003) ont étudié un autre modèle développé initialement par Davidenkov (Davidenkov, 1938) basé sur les frictions internes non localisées. Cette fois, les dislocations peuvent glisser sur de longues distances induisant de la micro-plasticité. Contrairement au *breakaway model*, la boucle d'hystérésis de la courbe contrainte/déformation des dislocations du modèle de friction diffus possède des branches symétriques ne passant pas par l'origine en régime permanent (Fig.6). Cela signifie que pour un niveau de déformation nul, le niveau de contrainte n'est pas nul. Nazarov qualifie ce type relation, hystérésis inélastique en opposition à l'hystérésis élastique du modèle GL :

$$\varepsilon_h(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = \frac{\alpha}{m} \begin{cases} (\Delta \varepsilon + \varepsilon)^m - 2^{m-1} \Delta \varepsilon^m, & \text{si } \dot{\varepsilon} > 0 \\ -(\Delta \varepsilon - \varepsilon)^m + 2^{m-1} \Delta \varepsilon^m, & \text{si } \dot{\varepsilon} < 0 \end{cases} \quad (2.6)$$

avec α , le paramètre non-linéaire hystérésis inélastique.

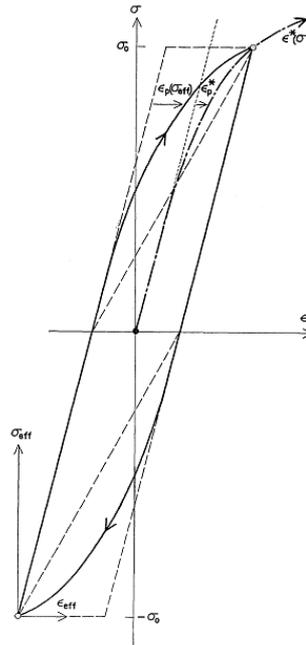


Figure 6 : Boucle hystérésis produite par le modèle de friction généralisé de Davidenkov. Extrait de (Asano, 1970)

Pour les deux modèles, le challenge est d'identifier le type de loi décrivant la dépendance en amplitude de l'atténuation et de la variation du module. La loi peut être linéaire, quadratique, cubique ou suivre une loi de puissance de degré m (m étant un réel), en fonction des caractéristiques du matériau telles que le type de réseau cristallin, la fonction de distribution, la densité et le type de dislocations, la concentration des vacances d'atomes, le nombre d'atomes interstitiels ou dopants, la taille de grain, etc.... Par exemple, lorsque la densité des dislocations dans le zinc polycristallins décroît, la dépendance en amplitude du décalage en fréquence passe d'une loi linéaire à une loi quadratique (Nazarov and Kolpakov, 2000).

Dans le cas particulier d'une élasticité hystérétique quadratique ($m = 2$), nous pouvons remarquer que l'équation précédente (Eq.2.6) est similaire à la formulation obtenue avec l'espace de Preisach-Mayergoyz dans le cas d'un matériau purement hystérétique :

$$\varepsilon_h(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = \frac{\alpha}{2} [2(\Delta\varepsilon)\varepsilon - \text{sign}(\dot{\varepsilon})((\Delta\varepsilon)^2 - \varepsilon^2)] \quad (2.7)$$

Le *PM-space* initialement utilisé (McCall and Guyer, 1994; Guyer *et al.*, 1995) pour décrire le comportement élastique non-linéaire non classique des roches est maintenant largement utilisé pour décrire le comportement des matériaux de type NME en général (milieux granulaires consolidés ou non, matériaux micro-fissurés...). Le modèle *PM-Space* introduit des unités mésoscopiques hystérétiques bistables [en anglais «*Hysteretic Mesoscopic Units* (HMU)»] comme composantes du matériau. Elles sont généralement assimilées à des microfissures ou des surfaces en contact qui sont alternativement ouvertes et fermées suivant le niveau de déformation appliqué et leur précédent état. Le module hystérétique non-linéaire K peut être dérivé de ce modèle en combinant les paramètres non-linéaires classiques (β et δ (ne pas confondre avec le décrement logarithmique δ), représentant respectivement les non-linéarités quadratique et cubique) issus de la théorie de Landau avec le paramètre hystérétique α . Dans ce cas là, nous pouvons représenter la relation contrainte/déformation dans une dimension par (Van den Abeele *et al.*, 2000a):

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = K_0 \left(\varepsilon - \beta\varepsilon^2 - \delta\varepsilon^3 + \frac{\alpha}{2} [2(\Delta\varepsilon)\varepsilon - \text{sign}(\dot{\varepsilon})((\Delta\varepsilon)^2 - \varepsilon^2)] \right) \quad (2.8)$$

Quand les non-linéarités d'origine hystérétique dépassent les non-linéarités classiques (généralement pour des déformations supérieures à 10^{-6} (Johnson 2005), les deux paramètres non-linéaires décrivant respectivement le décalage en fréquence (ou la variation du module

élastique) et le changement de l'atténuation (ou le décrétement logarithmique) en fonction de la déformation, peuvent être extraits de l'Eq.2.8 suivant (Johnson and Sutin, 2005):

$$\frac{\Delta f}{f_0} = \frac{1}{2} * \frac{\Delta K}{K_0} = \frac{\alpha_f}{2} * \Delta \varepsilon \quad (2.9)$$

$$Q^{-1} - Q_0^{-1} = \frac{1}{\pi} (\Delta \delta) = \frac{\alpha_Q}{2} * \Delta \varepsilon \quad (2.10)$$

où f , K , Q et δ sont respectivement la fréquence de résonance, le module élastique, le facteur de qualité et le décrétement logarithmique. L'indice « 0 » correspond à la valeur obtenue pour le plus petit niveau d'excitation (hypothèse d'un régime linéaire). Nous pouvons remarquer que la dépendance en amplitude est linéaire comme dans le cas d'une élasticité non-linéaire hystérétique quadratique représentée par le modèle de Davidenkov ($m = 2$, voir les Eq. 2.4 et 2.5). Les deux paramètres α_f et α_Q sont reliés au paramètre général α de l'Eq.2.7.

Pour résumer, les trois modèles phénoménologiques (Granato-Lücke, Davidenkov et Preisach-Mayergoyz) que nous venons de décrire, proposent de modéliser les phénomènes d'ADIF et d'ADMD que nous observons expérimentalement à travers le décalage de la fréquence de résonance (ou. du module élastique) et le changement de l'atténuation (ou. du décrétement logarithmique), bien que l'origine de l'ADIF et de l'ADMD soit différente pour chacun des modèles.

2.2.2 Un rapport indépendant de la déformation : le paramètre de Read

En 1940, Read propose de calculer le rapport entre le facteur de perte non-linéaire et la variation non-linéaire du module élastique, ce rapport étant indépendant de la déformation :

$$r = - \frac{\Delta \delta}{\left(\frac{\Delta K}{K_0} \right)} \quad (2.11)$$

où $\Delta \delta$ and $\Delta K/K_0$ sont respectivement la partie non-linéaire dissipative ADIF ($\Delta \delta = \Delta(\pi/Q)$ avec Q , le facteur de qualité) et la partie non-linéaire élastique ou réactive ADMD ($\Delta K/K_0 = 2\Delta f/f_0$). L'existence d'un rapport indépendant de l'amplitude de vibration a été confirmée pour les modèles de Granato-Lücke et Davidenkov dans le cas particulier d'une relation en loi de puissance pour l'ADIF et l'ADMD (Lebedev, 1999). Afin de comparer les deux types de boucles hystérétiques, Lebedev a décrit la relation entre le rapport r et l'exposant de la fonction de la loi de puissance $n = m+1$ pour chacun des deux modèles :

$$r_D = 4n/(n + 2) \text{ (Davidenkov) (2.12)}$$

$$r_{GL} = n/(n + 2) \text{ (Granato – Lücke) (2.13)}$$

Dans le cas particulier d'une hystérésis quadratique ($n=1$), $r_D = 4/3$ et $r_{GL} = 1/3$ (dans le cas du modèle GL généralisé par Nazarov, $r_{GL}=2/3$). Ce rapport a aussi été défini pour le modèle *PM-Space* par Van Den Abeele (Van Den Abeele, 2007):

$$r_{PMS} = -\frac{\pi}{2} * \frac{\alpha_Q}{\alpha_f} = \frac{4}{3} \approx 1.33 \text{ (2.14)}$$

Ce résultat est uniquement valide si le décalage en fréquence et la variation d'atténuation présentent une dépendance linéaire avec l'amplitude de déformation (voir Eqs. 2.9 et 2.10). Nous pouvons remarquer que le rapport r_{PMS} est égal à r_D dans le cas particulier d'une hystérésis quadratique. Cette observation semble conforter l'idée que la relation non-linéaire contrainte/déformation déterminée avec le *PM-space* n'est qu'un cas particulier du modèle de Davindenkov bien que l'approche mathématique soit différente.

Expérimentalement, les auteurs trouvent des valeurs proches du rapport r_D pour les métaux polycristallins (voir la table récapitulatif dans (Lebedev, 1999)). Par contre, le rapport r_{PMS} , calculé pour les roches ayant une hystérésis quadratique, est généralement bien inférieur à celui prédit par la théorie (Johnson and Sutin, 2005).

Cependant, d'autres auteurs ont montré que le rapport de Read n'est pas toujours indépendant de la déformation. Ainsi Kustov et Gremaud (Gremaud and Kustov, 1999; Kustov *et al.*, 1999) ont observé que le rapport de Read d'un alliage de cuivre-nickel (avec 7.6% de Ni) à très faible température (8°K), excité autour de sa fréquence de résonance (de l'ordre de 100kHz), augmente subitement après le dépassement d'un seuil de déformation ($\varepsilon > 10^{-4}$) (Fig. 7). Sur la figure sont aussi représentées les valeurs théoriques de r pour le modèle breakaway (ou GL) et le modèle de friction non-localisée (ou Davidenkov) dans le cas d'une loi de puissance d'exposant $m = 0.7$ (partie linéaire de la courbe pour $\varepsilon < 10^{-4}$). Aussi, lorsque le rapport de Read est indépendant de la déformation ($\varepsilon < 10^{-4}$), le modèle de friction non-localisée semble le plus adéquat. Kustov et Gremaud ont aussi remarqué que le rapport de Read évolue de manière non-linéaire pour d'autres alliages de Cuivre-Nickel (avec 2.3% de Ni) ayant subit des traitements (recuit ou grande déformation) (Fig.8).

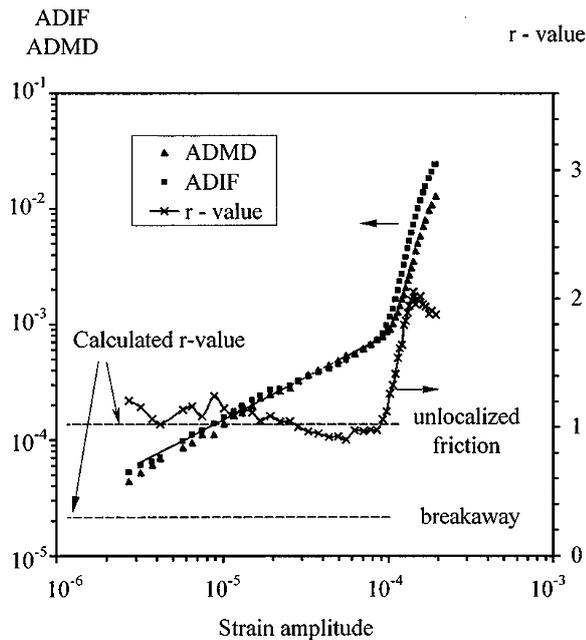


Figure 7 : Dépendance en amplitude de l'atténuation [« Amplitude dependent internal friction » (ADIF)] et dépendance en amplitude de la variation du module [« Amplitude dependent modulus defect » (ADMD)] mesuré pour un alliage de cuivre-nickel (7.6% de Ni) à très faible température (8°K), excité à sa fréquence de résonance (de l'ordre de 100kHz). Le rapport de Read r expérimental est calculé et comparé au rapport de Read théorique r_{GL} (breakaway model) et r_D (unlocalized friction model) dans le cas d'une loi de puissance d'exposant $m = 0.7$ (partie linéaire de la courbe pour $\varepsilon < 10^{-4}$). Extrait de (Kustov *et al.*, 1999)

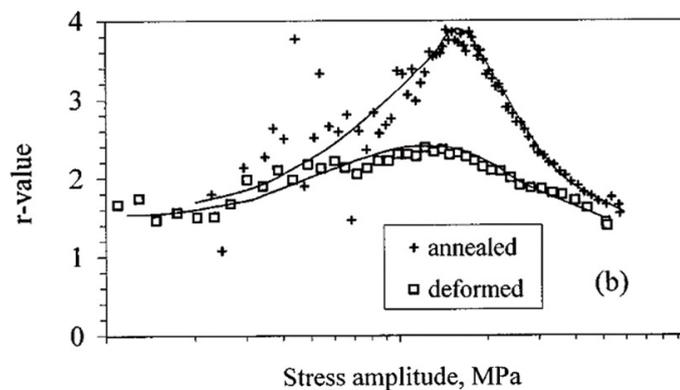


Figure 8 : Rapport de Read r pour un alliage de cuivre-nickel (avec 2.3% de Ni) ayant subi différents traitements (recuit « annealed » ou grande déformation « deformed »). Extrait de (Kustov *et al.*, 1999)

Pour conclure, le rapport de Read r , souvent négligé dans la littérature, permet de caractériser la forme de la boucle d'hystérésis dans la relation contrainte/déformation. En effet, sa forme dépend de l'exposant m de la loi de puissance reliant la contrainte à la déformation mais aussi du type de non-linéarité : élastique (modèle GL (Eq. 2.2, Fig.4)) ou inélastique (modèle de Davidenkov (Eq. 2.6, Fig. 6)). Ainsi suivant l'exposant m de la loi de puissance et la valeur r du rapport de Read, il est possible d'émettre des hypothèses quant au

modèle le plus approprié pour décrire les phénomènes non-linéaires hystérétiques élastique (ADMD) et dissipative (ADIF), et peut-être de conclure quant à l'origine physique de l'hystérésis (dislocation localisée, non-localisée ou micro-plasticité, friction au niveau des joints de grain, présence de microfissures...). Par contre si le rapport n'est pas constant avec l'amplitude d'excitation, de nouveaux outils d'interprétation sont nécessaires pour tenter de comprendre les phénomènes physiques mis en jeu (Gremaud and Kustov, 1999). D'autre part, l'évolution du rapport de Read peut donner des informations complémentaires sur les paramètres non-linéaires dissipatif et élastique lorsque le matériau est modifié (par traitement thermique, endommagement progressif...). Pour cela, il est préférable de s'appuyer sur un paramètre de Read modifié comme le propose Inserra (Inserra *et al.*, 2008) qui définit un nouveau rapport de Read r_{nl} permettant de s'affranchir des variations des propriétés linéaires du matériau : $r_{nl} = -\frac{2\pi}{Q_0} + r$. Grâce à r_{nl} , Inserra a pu mettre en évidence un changement de régime non-linéaire au cours du processus de compaction d'un milieu granulaire non consolidé.

2.3 Dépendance en température, en amplitude, en fréquence et en saturation. Des clés pour comprendre l'activation et la relaxation des mécanismes hystérétiques

Nous venons de présenter trois modèles permettant la description phénoménologique des manifestations d'ADIF ou d'ADMD à l'échelle macroscopique dans des matériaux de structures aussi différentes que les roches, les métaux ou les matériaux endommagés, ayant en commun la présence de micro-hétérogénéités. Pourtant il existe de nombreux cas où ces modèles ne suffisent pas pour expliquer les observations expérimentales. En effet, ces modèles se limitent à la description de la boucle hystérétique, résultat du processus non-linéaire élastique non classique. Ils ne tiennent pas compte des dépendances en fréquence, en température, en amplitude ou en saturation que les matériaux peuvent exprimer dans certaines conditions. Or la compréhension de ces dépendances devrait nous permettre de mieux appréhender les origines des phénomènes d'ADIF et d'ADMD, en particulier l'activation et la relaxation du mécanisme hystérétique. Lorsque l'activation et la relaxation du mécanisme hystérétique sont quasi-instantanées, les phénomènes sont qualifiés de dynamique rapide [en anglais « *fast dynamics* »] en opposition à d'autres phénomènes dits de "dynamique lente" [en anglais « *slow dynamics* »] tels que le conditionnement (TenCate and Shankland, 1996;

Johnson and Sutin, 2005) et la relaxation (Holcomb, 1981), ce dernier terme étant également utilisé couramment pour les modèles visco-élastiques en rhéologie.

Dans cette partie, nous nous attacherons à présenter les liens potentiels qui existent entre les dépendances en température, en amplitude, en fréquence et en saturation observées expérimentalement et l'activation ou la relaxation des mécanismes hystérétiques, qu'elles soient visibles en dynamique rapide ou lente.

2.3.1 Dépendance en température

La dépendance en température des propriétés non-linéaires hystérétiques a été largement étudiée dans les métaux mais très peu d'études existent dans les roches (Ulrich GRL 2001). Ainsi Ulrich a mis en évidence une boucle d'hystérésis de la fréquence de résonance lorsqu'un échantillon de grès est successivement refroidi puis réchauffé. A notre connaissance, aucune étude n'a été menée pour suivre le comportement non-linéaire non classique (ADIF et ADMD) des roches à différentes températures. Nous allons donc nous concentrer sur les métaux pour lesquels l'action de la température est non négligeable. En effet, une augmentation de l'ADIF (et de l'ADMD quand celui-ci est mesuré) est souvent associée à un réchauffement de l'échantillon. L'une des premières observations a été réalisée par Nowick (Nowick, 1950) sur des monocristaux de cuivre (structure cubique face centrée (cfc)). Il a mesuré un fort niveau de non-linéarité dissipative ($\alpha_Q \approx 1000$, d'après Fig.4 de (Nowick, 1950)) qui décroît fortement lorsque la température diminue de 33°C à -49°C sans pour autant disparaître totalement (voir table II de (Nowick, 1950)). Par contre il trouve que le rapport de Read r (voir paragraphe 2.2.2) du cuivre est indépendant de la température ($r \approx 3.5$). D'autres auteurs ont remarqué que l'ADIF de l'aluminium (structure (cfc)) sous ses différentes formes (monocristallin, polycristallin ou alliage) augmente lorsque la température passe de -270°C à 25°C (voir Fig.1 de (Hutchison and Rogers, 1962) et Fig.1 de (Golyandin *et al.*, 1998)). Par exemple, Golyandin (Golyandin *et al.*, 1998) mesure une augmentation de α_Q de plus d'un ordre de grandeur (α_Q vaut environ 100 à 25°C (d'après Fig. 1 de (Golyandin *et al.*, 1998))) lorsque la température passe de -270 à 25°C (résonance à 100kHz). A très faibles température et déformation ($\varepsilon < 10^{-5}$), les frictions internes sont minimales et quasiment indépendantes de l'amplitude de déformation. Mason (Mason, 1956) observe le même comportement pour du plomb polycristallin (structure (cfc)) ($\alpha_Q = 70$ à température ambiante (d'après fig. 6 de (Mason, 1956)) et $\alpha_Q = 30$ à -196°C (d'après fig. 10 de (Mason, 1956))). Enfin les alliages de Cu-Ni ont été étudiés par Golyandin (Golyandin *et al.*, 1996), Kustov

(Kustov *et al.*, 1999) et Gremaud (Gremaud and Kustov, 1999) qui mesurent la non-linéarité élastique en plus de la non-linéarité dissipative. Ils observent une augmentation des deux types de non-linéarité avec la température (la température varie entre -270°C et 25°C) lorsque la déformation est supérieur à 10^{-5} (Fig.9). Par contre, aucune dépendance n'est visible pour de plus faibles niveaux d'excitation ($\varepsilon < 10^{-5}$) bien que l'ADIF soit toujours présent avec une relation linéaire entre la déformation et la dissipation (Fig.9). Enfin, ils notent que quand la déformation est proche de 10^{-4} , les deux non-linéarités ADIF et ADMD saturent, quel que soit le niveau de température. Ils calculent aussi le rapport de Read r et ils remarquent que r n'est pas constant (Fig.7). Ainsi r augmente considérablement lorsque le taux déformation dépasse le seuil de 10^{-4} . Ceci pourrait être lié à une élévation de la température de l'échantillon lors de l'expérience qui modifierait différemment l'ADMD de l'ADIF (Sapozhnikov *et al.*, 2010b). En effet, très récemment, Sapozhnikov (Sapozhnikov *et al.*, 2010a; b) a pu mettre en évidence un rapport r température-invariant proche de 1 dans les polycristaux d'Indium lorsque le niveau de déformation restait bien inférieure à 10^{-4} . Dans cette même étude, il conclut que le niveau d'ADIF élevé à température ambiante (25°C) est certainement lié à la dissolution des nuages de Cottrell (voir paragraphe 2.2.1).

Toutes ces études montrent que les non-linéarités dissipative et élastique intrinsèques des matériaux ont tendance à augmenter avec la température. Les hypothèses avancées quant aux origines de cette dépendance sont liées aux dislocations et à leurs interactions (modèle de Gremaud et Kustov (Gremaud and Kustov, 1999; Kustov *et al.*, 1999). A faible température et faible niveau de déformation, le mécanisme hystérétique serait surtout lié au mouvement des dislocations sur de faibles distances (localisées) et au travers d'obstacles de faible énergie. Pour recruter plus de dislocations, le niveau de déformation doit être augmenté pour que les dislocations puissent passer des barrières énergétiques plus importantes. Ce mécanisme nécessiterait une activation thermique. Lorsque la température augmente, les obstacles seraient plus facilement franchissables. Ainsi avec le même niveau de déformation mais à température plus élevée, la quantité de dislocations en mouvement serait supérieure, produisant plus d'effet hystérétique (visible sur le zoom de la Fig.9 à partir de $\varepsilon > 10^{-5}$). A partir d'un seuil de température élevée, aucun obstacle ne serait infranchissable. Toutes les dislocations pourraient être alors recrutées et les phénomènes d'ADIF et d'ADMD deviendraient à nouveau indépendants de la température. En plus des mouvements de dislocations à faible distance, il existe aussi des mouvements sur de longues distances de dislocations non localisées ou diffuses. Ces mouvements auraient toujours lieu, quelle que soit

la température car le mécanisme serait athermique. Comme nous l'avons vu dans la première partie de le paragraphe (2.2.1), les frictions non localisées ou diffuses générées par ces dislocations sont bien modélisées par le modèle de Davidenkov.

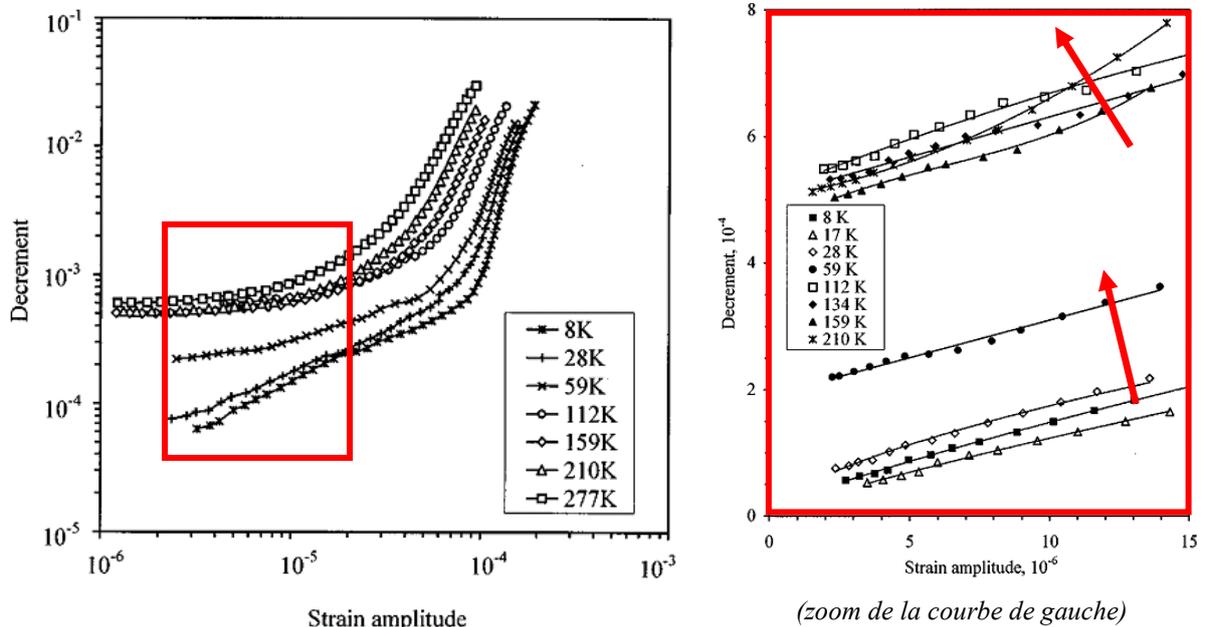


Figure 9 : Exemple de dépendances en amplitude de l'atténuation (ADIF) dans du Cu-Ni pour différentes températures et zoom. Extrait de (Kustov *et al.*, 1999)

2.3.2 Dépendance en amplitude

Un matériau est considéré comme non-linéaire élastique si son module varie avec l'amplitude de déformation. Ce comportement est largement décrit dans la littérature par la théorie classique de Landau. Par contre si la partie imaginaire exprimant le facteur de dissipation de son module varie aussi avec l'amplitude de déformation, nous sommes certainement en présence d'une non-linéarité élastique non classique qui peut être décrite par les modèles évoqués dans les paragraphes précédents (2.2.1 et 2.2.2). Dans les deux cas, la non-linéarité classique ou non classique, dissipative ou élastique est censée suivre une loi en puissance de n avec la déformation. Or ceci n'est pas toujours le cas car la dépendance en amplitude des frictions internes et du module peut varier avec le niveau de déformation (i.e. l'exposant de la loi de puissance n change après le passage de seuil de déformation).

Nous pouvons distinguer essentiellement deux approches pour expliquer les différentes phases de la non linéarité dissipative et élastique avec l'amplitude d'excitation. La première approche développée par Pasqualini et Tencate (Pasqualini *et al.*, 2007), consiste à dire que les non-linéarités sont dans un premier temps d'origine classique (mouvement inter-

atomique) et qu'il faut atteindre un seuil de déformation suffisant pour que le mécanisme hystérétique bistable (adhésion et/ou friction inter-granulaire) devienne dominant. Ce seuil se situe généralement aux environ de 10^{-7} - 10^{-6} dans les roches telles que le grès de Berea (Johnson *et al.*, 2004; Pasqualini *et al.*, 2007) ou le granite (Nazarov *et al.*, 2009). Quelques études (Johnson *et al.*, 2004) font état d'un deuxième seuil pour des niveaux de déformation important ($\varepsilon > 10^{-4}$) pour lequel aucune explication n'existe actuellement.

Dans la deuxième approche, développée plus spécifiquement pour les métaux, l'existence de seuils est liée à différents mécanismes d'activation hystérétique, chacun ayant son propre niveau d'excitabilité. On retrouve un seuil basse-déformation entre 10^{-6} et 10^{-5} , un ordre de grandeur supérieur à celui trouvé dans les roches, pour divers métaux comme le plomb (Mason, 1956; Nazarov, 1999) ou l'aluminium (Mason, 1956; Chambers and Smoluchowski, 1960). Ce seuil est associé à une dépendance en température (externe) comme nous l'avons vu précédemment (2.3.1). Il existe aussi un deuxième seuil que l'on retrouve généralement pour des niveaux de déformation supérieur à 10^{-4} dans des matériaux comme l'aluminium (Mason, 1956) (Fig.10), le plomb (Mason, 1956), ou les alliages Cu-Ni (Kustov *et al.*, 1999). Il est tout à fait possible que les résultats obtenus à ces fortes amplitudes ne soient que le reflet de l'élévation intrinsèque de la température de l'échantillon qui viendrait gonfler le niveau de non-linéarité (Kustov *et al.*, 1999; Sapozhnikov *et al.*, 2010b). Enfin, lorsque la variation du module (ADMD) est également mesurée, il semble que la saturation de l'ADMD soit plus rapide que pour l'ADIF, d'où un rapport de Read décroissant (Fig.8 et Fig.11). L'existence de seuils dans les métaux est liée aux différentes interactions entre les dislocations et à la portée de cette interaction (locale ou diffuse) (e.g. Modèle de Gremaud et Kustov (Gremaud and Kustov, 1999; Kustov *et al.*, 1999)).

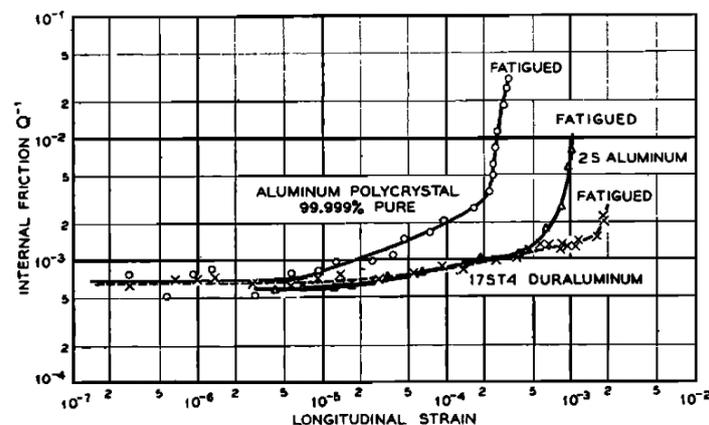


Figure 10 : Exemple de dépendance en amplitude de l'atténuation (ADIF) pour divers échantillons d'aluminium. Notons que l'ADIF commence pour une déformation $\varepsilon > 10^{-5}$ avec un second seuil pour $\varepsilon > 10^{-4}$. Extrait (Mason, 1956).

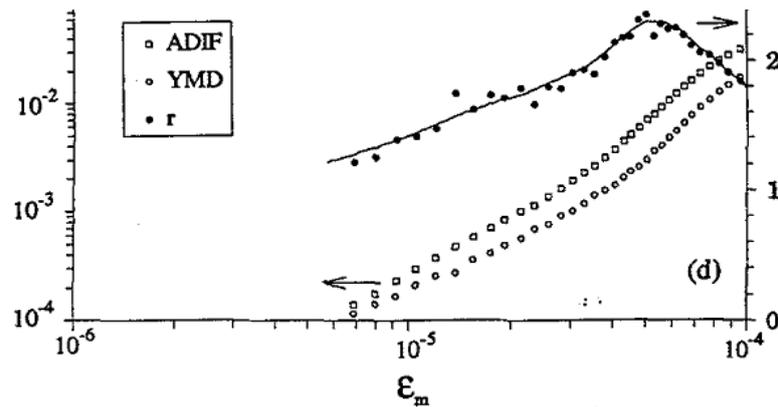


Figure 11 : Variation du rapport de Read non monotone. Seuil à $\varepsilon \approx 5.10^{-5}$. Monocristal de Cu-Ni avec 7.6% de Ni (ADIF : Amplitude Dependent Internal Friction ; YMD : Young Modulus Defect ; r : Rapport de Read). Extrait de (Golyandin *et al.*, 1996)

Une troisième approche concerne spécifiquement les matériaux micro-fissurés. Solodov (Solodov *et al.*, 2002) observe l'apparition de sous-harmoniques lors de la propagation d'ondes de surface tandis que Moussatov (Moussatov *et al.*, 2003) observe des phénomènes similaires pour des ondes de volumes. Dans les deux cas, les phénomènes non-linéaires (harmonique, sous-harmonique) se manifestent à partir d'un seuil d'excitation, de plus celui-ci diffère si l'excitation est croissante ou décroissante. Le phénomène observé est actuellement attribué à l'activation hystérétique du déclenchement et de l'arrêt du clappement de contacts intermittents entre les lèvres de la fissure (Moussatov *et al.*, 2003).

La dépendance en amplitude joue aussi un rôle en dynamique lente. Le conditionnement du matériau se traduit par un changement temporaire des propriétés élastiques non-classiques d'un matériau à la suite d'une déformation dynamique. TenCate compare le conditionnement à un micro-fluage réversible (Tencate, 2011) initié dynamiquement, par exemple par une source acoustique sinusoïdale, à des niveaux de déformation bien inférieurs, de deux à trois ordres de grandeur, à ceux nécessaires en quasi-statique mais relativement grands pour une onde ultrasonore ($10^{-6} < \varepsilon < 10^{-3}$). Ainsi, les premières expériences de conditionnement attribuées à Read dans le cuivre (Read, 1940), à Mason dans le plomb (Mason, 1956) puis à Chambers dans l'aluminium (Chambers and Smoluchowski, 1960), ont toutes en commun l'excitation de l'échantillon à un fort niveau de déformation (de l'ordre de 10^{-4}). A la suite de cette excitation, l'ADIF et l'ADMD sont durablement perturbés avant un retour à leur état initial. Dans les roches, ce même phénomène fut découvert plus tard, en particulier dans le grès de Berea (Johnson *et al.*, 1996; TenCate and Shankland, 1996). On sait maintenant qu'il est aussi présent dans les matériaux endommagés et qu'il pourrait donc servir d'indicateur de l'endommagement (Bentahar *et al.*, 2006). Une

expérience récente (Pasqualini *et al.*, 2007) menée sur un échantillon de grès de Berea montre que celui-ci ne présente pas de phénomène de conditionnement tant que son excitation reste contenue dans un régime de non-linéarité classique, c'est à dire pour une amplitude de déformation faible ($<5.10^{-7}$). Par contre, dès que ce seuil est dépassé, le matériau devient non-linéaire non classique et le conditionnement du matériau devient visible. Cette expérience confirme (1) que le conditionnement du matériau est bien associé aux non-linéarités non classiques, et (2) que dynamique rapide et dynamique lente sont étroitement liées, à tel point que le conditionnement vient perturber les mesures de non-linéarité intrinsèque du matériau non conditionné. La séparation des propriétés non-linéaires intrinsèque sdu conditionnement reste un défi. Une récente étude préconise de conditionner totalement l'échantillon (« *fully conditioning* ») pour évaluer uniquement les propriétés non-linéaires (Scalerandi *et al.*, 2010).

2.3.3 Dépendance en fréquence : relaxation rapide et lente

L'élasticité hystérétique et ses manifestations (ADIF et ADMD) sont généralement considérées comme indépendantes de la fréquence d'excitation ainsi que le prédisent les principaux modèles (décrits paragraphe 2.2.1) et que le confirment les observations expérimentales, par exemple dans le cuivre (Nowick, 1950). Or quelques études ont montré que les non-linéarités élastique et dissipative tendent à décroître lorsque la fréquence augmente dans le Cu-NI (Kustov *et al.*, 1999), dans le grès (Nazarov *et al.*, 2002) et le calcaire (Nazarov *et al.*, 2007). Une dépendance en fréquence signifie l'introduction d'un temps caractéristique dans le mécanisme hystérétique. Cette dépendance est donc intimement liée aux mécanismes de relaxation de l'élasticité hystérétique qui peuvent être quasi-instantanés (relaxation rapide) ou durer quelques secondes à quelques jours (relaxation lente). D'autres mécanismes non hystérétiques (relaxation linéaire (Zaitsev and Sas, 2000; Zaitsev and Matveev, 2006) ou viscosité non-linéaire (Nazarov and Kolpakov, 2000; Nazarov *et al.*, 2010) peuvent aussi donner lieu à une dispersion fréquentielle de la dépendance en amplitude de l'atténuation (ADIF) et du module élastique (ADMD).

Relaxation lente après conditionnement

La caractérisation de la relaxation lente, généralement après conditionnement (Johnson and Sutin, 2005) ou parfois après un choc thermique (TenCate *et al.*, 2000), peut se faire par l'intermédiaire de la résonance du matériau. La technique est comparable à celle mise en œuvre pour caractériser l'élasticité non-linéaire des matériaux. Elle consiste à suivre

l'évolution de la fréquence de résonance d'un échantillon à faible amplitude de déformation (régime supposé linéaire) après une excitation de forte intensité (mais toujours inférieure à la limite d'élasticité). Juste après l'arrêt de l'excitation, les valeurs de la fréquence de résonance (ou le module élastique) ainsi que le facteur de qualité (ou le décrement logarithmique) ne sont pas égales à leur valeur initiale (avant excitation, lorsque le matériau est au repos) mais sont proches de la valeur mesurée pendant l'excitation. Ils reviennent à leur valeur initiale avec une dépendance logarithmique du temps qui varie de quelques secondes à quelques jours selon les matériaux et la durée de conditionnement (Fig.12). Dans une étude menée sur plusieurs échantillons (Johnson and Sutin, 2005), Johnson met en évidence que les effets de dynamique lente (relaxation) et rapide (mesures non linéaire en résonance) sont liés.

Les origines de la relaxation lente restent encore mal connues. Certains modèles proposent une origine mécanique, tel que le modèle « *soft ratchet* » (Vakhnenko *et al.*, 2005), d'autres proposent une origine liée à des fluctuations thermiques (Nobili and Scalerandi, 2004; Scalerandi *et al.*, 2010) ou encore thermo-élastiques (Zaitsev *et al.*, 2003).

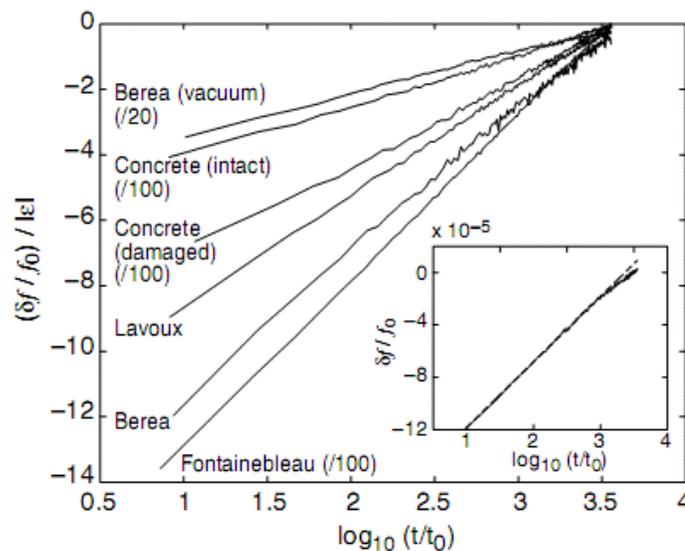


Figure 12 : Retour à un état d'équilibre linéaire (décalage fréquentiel nul) pour divers matériaux (roches et matériaux endommagés). Le retour suit une logarithmique du temps. Le décalage fréquentiel correspond à la variation du module élastique (ADMD)) propre aux matériaux non-linéaires hystérétiques. Extrait de (TenCate *et al.*, 2000)

Relaxation rapide

Lorsque les propriétés non-linéaires hystérétiques des matériaux dépendent de la fréquence d'excitation de longueur d'onde bien supérieure à la taille des défauts, le temps

caractéristique de ces défauts (atomique, microfissures) n'est plus négligeable. Pour prendre en compte cette dépendance en fréquence, Gusev (Gusev and Tournat, 2005) propose une modification du modèle classique basé sur l'espace de Preisach-Mayergoyz (Guyer *et al.*, 1995) en ajoutant une dépendance temporelle pilotée par la température, d'où le nom du modèle : Preisach-Arrhénius. Dans ce modèle, la transition entre deux états (« ouvert » ou « fermé ») d'une unité hystérétique bistable n'est plus instantanée mais est activée par un processus de relaxation thermique. Le niveau d'excitation tout comme la fréquence va agir sur le processus d'activation et de relaxation thermique. Si la fréquence d'excitation est suffisamment petite (bien inférieure à la fréquence de relaxation), le matériau, et en particulier ses unités hystérétiques, a le temps de retrouver un état d'équilibre. Il se trouve dans un état de quasi-équilibre. Dans le cas opposé, lorsque la fréquence d'excitation est supérieure à la fréquence de relaxation atomique (de l'ordre du MHz), les unités hystérétiques bistables du matériau n'ont pas le temps de changer d'état. Le matériau se trouve dans un état quasi-gelé. L'influence de la fréquence est d'autant plus faible que l'on s'écarte de ces deux extrêmes.

Autres mécanismes non-hystérétiques

D'autres modèles font intervenir une relaxation linéaire du même type que celle que l'on retrouve en rhéologie lorsque la viscosité du matériau est prise en compte (Zaitsev and Sas, 2000; Fillinger *et al.*, 2006b; Zaitsev and Matveev, 2012). La relaxation des inhomogénéités souples du matériau est alors régie par des équations de relaxation similaires à celles dérivées pour la première fois par Debye pour décrire la relaxation diélectrique (Zener, 1948). Ces équations font apparaître des pics d'atténuation (Fig.13) à certaines fréquences caractéristiques (interactions entre obstacles et dislocation, interactions entre les lèvres des microfissures, interactions interatomiques...). Si, lors de l'expérience en résonance, la résonance de structure (liée à l'élasticité et à la géométrie du matériau) est proche du pic d'atténuation, les deux phénomènes entrent en compétition. En effet lorsque la fréquence se décale vers les basses fréquences (phénomène hystérétique élastique), le matériau s'écarte de son pic d'atténuation lié au phénomène de relaxation linéaire. Dans ce cas, le facteur de qualité peut augmenter plus rapidement que la diminution attendue par la dissipation hystérétique élastique. On observerait alors un phénomène de transparence acoustique tel que celui mesuré par Fillinger dans un tube de verre fissuré (Fillinger *et al.*, 2006a). La non-linéarité dissipative observée est dès lors causée par deux phénomènes distincts, l'un non linéaire hystérétique et l'autre non hystérétique mais dispersif en fréquence. Pour s'affranchir des non-linéarités hystérétiques, Zaitsev propose une expérience faisant intervenir deux ondes

(une onde « pompe » de forte intensité ε_0 et de fréquence f_0 et une onde « sonde » de faible intensité ε et de fréquence f) qui doivent respecter la condition suivante : $f_0\varepsilon_0 \gg f\varepsilon$ (Zaitsev and Sas, 2000). Si cette condition est respectée, l'onde « pompe » a une vitesse de déformation tellement rapide que l'onde « sonde » ne « voit » pas l'hystérésis élastique. L'onde sonde sera donc uniquement sensible à la dissipation non-hystérétique du matériau.

Enfin Nazarov a introduit un terme de viscosité non-linéaire dans l'équation non-linéaire phénoménologique (Eq. 2.1) qui serait responsable de la dissipation du son par le son (en anglais « *Sound by Sound damping* ») dans certaines roches (grès (Nazarov *et al.*, 2002), calcaire (Nazarov *et al.*, 2007), granite (Nazarov *et al.*, 2010)) et certains métaux (plomb (Nazarov, 1999), Zinc (Nazarov and Kolpakov, 2000)).(Guyer *et al.*, 2011)

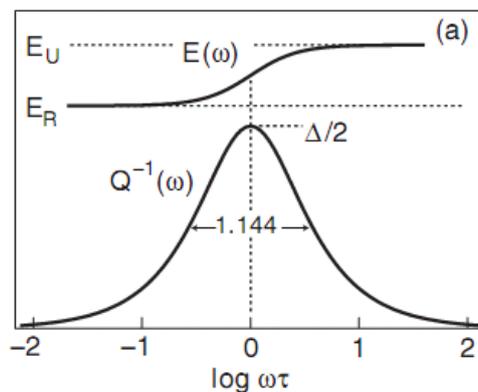


Figure 13 : Pic d'atténuation (= pic de Debye) pour un matériau viscoélastique linéaire. $E(\omega)$ correspond au module et $Q^{-1}(\omega)$ à la dissipation en fonction de la fréquence. E_U et E_R correspondent respectivement au module non-relaxé et relaxé (quasi-statique). Extrait du livre « *Internal friction in metallic materials: a handbook* » (Blanter, 2007).

A notre connaissance, la seule expérience ayant clairement montré le rôle de la relaxation (conditionnement) rapide a été réalisée très récemment sur une roche calcaire (Renaud JASA 2012 *soumis*). Cette expérience est basée sur l'acousto-élasticité dynamique (voir paragraphe 3.1.3 et (Renaud *et al.*, 2011)). Elle a montré que les propriétés élastiques et dissipatives du matériau changent quand le niveau d'excitation augmente. De plus ce changement provient quasi-exclusivement du conditionnement instantané du matériau au moment de la mise en résonance: la composante hystérétique est en fait quasiment négligeable. Après l'arrêt du signal d'excitation, une relaxation elle aussi quasi-instantanée se produit, environ équivalente aux deux tiers du conditionnement observé à la mise en route du signal. Le dernier tiers, relaxation lente suivant une loi logarithmique du temps, correspond aux dynamiques lentes observées précédemment (Johnson and Sutin, 2005). Cette observation remet en cause

l'interprétation de la dépendance en amplitude de l'atténuation et de la variation du module mesurée dans les roches. La non-linéarité élastique hystérétique serait négligeable en comparaison de la dissipation non-linéaire instantanée pour expliquer la variation de l'atténuation avec le niveau de déformation. La dépendance en amplitude du module et de l'atténuation serait surtout liée au changement quasi-instantané des propriétés élastiques du matériau à chaque niveau de déformation. Aucun des modèles précités ne prédit un tel comportement. Le rôle de la relaxation (viscosité) dans le comportement hystérétique des matériaux reste à établir.

2.3.4 Influence de l'humidité relative

L'influence de la saturation d'un fluide (en général de l'eau) sur le comportement non-linéaire des matériaux a été mesurée principalement dans les matériaux granulaires consolidés comme les roches (Zinszner *et al.*, 1997; Tutuncu *et al.*, 1998; Van Den Abeele *et al.*, 2002b; Johnson *et al.*, 2004). A ces matériaux, vient récemment s'ajouter le bois, qui possède un comportement élastique hystérétique différent suivant s'il est sec ou humide (Derome *et al.*, 2011). Dans la plupart des roches (sauf le marbre et la craie), l'élasticité hystérétique augmente rapidement lorsque l'humidité relative (RH) passe de 1% à 20% puis diminue peu à peu à mesure que l'échantillon est complètement saturé en eau. Dans tous les cas, la roche reste plus non-linéaire à $RH > 90\%$ qu'à $RH < 10\%$ (Fig.14). Récemment, une étude réalisée dans le béton montre que son comportement serait différent des roches avec une diminution rapide de la non-linéarité, lorsque l'échantillon passe de 0 à 20% d'humidité relative (Payan *et al.*, 2010). Cette différence serait due à la taille des pores plus grande que dans les roches qui ne favoriserait pas le phénomène de condensation capillaire lorsque la saturation en eau devient importante.

L'eau pourrait être à l'origine du comportement hystérétique des matériaux microporeux et en particulier des effets de dynamique lente. Or une expérience très récemment menée sur un échantillon de grès de Berea ultra sec, montre que son comportement hystérétique ne disparaît pas (Tencate, 2011). Un modèle basé sur la force de capillarité entre les joints de grain et autres micro-défauts, tente d'expliquer l'évolution de l'élasticité hystérétique avec la saturation en eau (Van Den Abeele *et al.*, 2002b). Ce modèle suggère que l'humidité sert d'activateur de non-linéarité en facilitant le recrutement des unités hystérétiques lorsque le matériau est soumis à une déformation dynamique. Un autre modèle montre que la présence d'un liquide visqueux (adhésion sur les bords des surfaces des joints

de grains ou microfissures) augmente considérablement la non-linéarité hystérétique (et classique) comparée à un liquide parfait (pas d'adhésion) (Nazarov, 2001a). Enfin, dans le cas de matériaux non-linéaires composés de tubes capillaires partiellement remplis d'un fluide idéal, la variation du rayon des capillaires lorsque le fluide est en mouvement, comme par exemple sous l'action d'une onde acoustique, contribue à l'augmentation de la non-linéarité élastique et dissipative du matériau (Nazarov and Radostin, 2008).

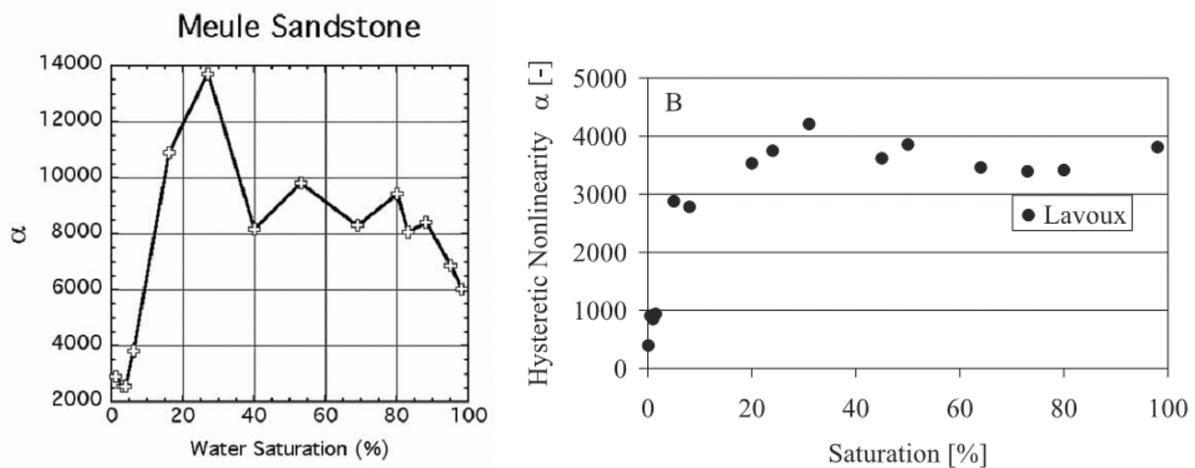


Figure 14 : Variation du paramètre non-linéaire hystérétique élastique (ADMD) en fonction de la saturation en eau d'un échantillon de grès de Meule (Johnson *et al.*, 2004) et d'un calcaire de Lavoux (Van Den Abeele *et al.*, 2002b).

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous venons de voir que la non-linéarité non-classique, souvent de type hystérétique quadratique, est présente dans de nombreux matériaux, allant des roches aux métaux monocristallins en passant par les matériaux endommagés comme les composites et le béton. Le comportement élastique et dissipatif non linéaire de l'os cortical natif ou endommagé possède les attributs qui définissent cette classe de matériau : une dépendance en amplitude de l'atténuation (ADIF) et du module élastique (ADMD) pour des niveaux de déformation comparable ($10^{-6} < \epsilon < 10^{-3}$).

Nous avons vu que les origines de la non-linéarité non-classique peuvent être :

1. multi-échelles : nanoscopique (dislocation), microscopique (joint de grain) ou mésoscopique (microfissures),
2. multi-dimensionnelles : ponctuel (défaut ponctuel, contact de type Hertz-Mindlin entre deux sphères), 1-D (dislocation, contact linéaire entre les bords d'une

fissure), 2-D (contact entre deux surfaces rugueuses ou non), 3-D (microfissure, joint de grain).

3. multi-mécanismes : adhésion/glissement [en anglais « *stick/slip* »], clappement [en anglais « *clapping* »], mouvement des dislocations au sens large (localisé, diffus, bande de kinking...).
4. parfois non-hystérétiques : relaxation linéaire, viscosité non-linéaire.

Il existe trois grands modèles permettant de décrire la non-linéarité hystérétique élastique dynamique observée dans tous ces matériaux : le modèle hystérétique élastique (Granato-Lücke), le modèle hystérétique inélastique (Davidenkov) et le modèle *PM-Space*. Ces trois modèles prédisent tous une relation proportionnelle de l'ADIF et de l'ADMD indépendante de la déformation caractérisée par le rapport de Read.

Confronté aux observations expérimentales, aucun modèle n'est complètement satisfaisant car ils ne prennent pas en compte :

1. La variation observée expérimentalement du rapport de Read en fonction de la déformation ;
2. L'existence d'un seuil d'activation de la non-linéarité non classique qui diffère assez peu suivant les matériaux et les conditions expérimentales ($\epsilon > 10^{-7} - 10^{-6}$). Ce seuil pourrait dépendre des capacités de mesure expérimentale ;
3. L'influence de la température qui peut faciliter le mécanisme hystérétique ou modifier durablement le comportement non-linéaire d'un matériau suite à un choc thermique ;
4. Le rôle de la relaxation linéaire et du conditionnement lents et rapides des matériaux qui peuvent modifier le niveau de la non-linéarité apparent mesuré ;
5. La saturation d'un fluide qui favoriserait le plus souvent l'expression de la non-linéarité non-classique.

Dans le reste de ce manuscrit, nous reviendrons régulièrement aux résultats présentés dans cette revue afin de tenter d'expliquer le comportement non-linéaire non classique de l'os cortical que nous observerons lors de nos expériences.

Bibliographie

- Aleshin, V., and Van den Abeele, K. (2007). "Friction in unconforming grain contacts as a mechanism for tensorial stress-strain hysteresis," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **55**, 765-787.
- Aleshin, V., and Van Den Abeele, K. (2007). "Microcontact-based theory for acoustics in microdamaged materials," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **55**, 366-390.
- Asano, S. (1970). "THEORY OF NONLINEAR DAMPING DUE TO DISLOCATION HYSTERESIS," *Journal of the Physical Society of Japan* **29**, 952-&.
- Barsoum, M. W. (2004). "Mechanical properties of the MAX phases."
- Barsoum, M. W., Murugaiah, A., Kalidindi, S. R., and Zhen, T. (2004). "Kinking nonlinear elastic solids, nanoindentations, and geology," *Physical Review Letters* **92**.
- Barsoum, M. W., Radovic, M., Zhen, T., Finkel, P., and Kalidindi, S. R. (2005a). "Dynamic elastic hysteretic solids and dislocations," *Physical Review Letters* **94**.
- Barsoum, M. W., Zhen, T., Kalidindi, S. R., Radovic, M., and Murugaiah, A. (2003). "Fully reversible, dislocation-based compressive deformation of Ti₃SiC₂ to 1GPa," *Nature Materials* **2**, 107-111.
- Barsoum, M. W., Zhen, T., Zhou, A., Basu, S., and Kalidindi, S. R. (2005b). "Microscale modeling of kinking nonlinear elastic solids," *Physical Review B* **71**.
- Bentahar, M., El Aqra, H., El Guerjouma, R., Griffa, M., and Scalerandi, M. (2006). "Hysteretic elasticity in damaged concrete: Quantitative analysis of slow and fast dynamics," *Physical Review B* **73**.
- Bentahar, M., and El Guerjouma, R. (2009). "Monitoring progressive damage in polymer-based composite using nonlinear dynamics and acoustic emission," *The Journal of the Acoustical Society of America* **125**, EL39.
- Blanter, M. S. (2007). *Internal friction in metallic materials: a handbook* (Springer Verlag).
- Capogrosso-Sansone, B., and Guyer, R. (2002). "Dynamic model of hysteretic elastic systems," *Physical Review B* **66**, 224101.
- Chambers, R., and Smoluchowski, R. (1960). "Time-dependent internal friction in aluminum and magnesium single crystals," *Physical Review* **117**, 725.
- Davidenkov, N. (1938). "Energy dissipation in vibrations," *Journal of Technical Physics* **8**.
- Derome, D., Griffa, M., Koebel, M., and Carmeliet, J. (2011). "Hysteretic swelling of wood at cellular scale probed by phase-contrast X-ray tomography," *Journal of Structural Biology* **173**, 180-190.
- Fillinger, L., Zaitsev, V., Gusev, V., and Castagnède, B. (2006a). "Wave self-modulation in an acoustic resonator due to self-induced transparency," *EPL (Europhysics Letters)* **76**, 229.
- Fillinger, L., Zaitsev, V. Y., Gusev, V., and Castagnede, B. (2006b). "Nonlinear relaxational absorption/transparency for acoustic waves due to thermoelastic effect," *Acta acustica united with acustica* **92**, 24-34.
- Finkel, P., Zhou, A. G., Basu, S., Yeheskel, O., and Barsoum, M. W. (2009). "Direct observation of nonlinear acoustoelastic hysteresis in kinking nonlinear elastic solids," *Applied Physics Letters* **94**.
- Golyandin, S., Sapozhnikov, K., Emel'yanov, Y. A., Sinani, A., Nikanorov, S., Kustov, S., and Robinson, W. (1998). "Influence of temperature and strain on the amplitude-dependent internal friction of high-purity aluminum," *Physics of the Solid State* **40**, 1667-1671.

- Golyandin, S., Sapozhnikov, K., Kustov, S., Nishino, Y., and Asano, S. (1996). "Influence of Ni content on internal friction and acoustoplastic effect in Cu-Ni single crystals," *Le Journal de Physique IV* **6**, 8-8.
- Granato, A., and Lucke, K. (1956). "THEORY OF MECHANICAL DAMPING DUE TO DISLOCATIONS," *Journal of Applied Physics* **27**, 583-593.
- Granato, A., and Lücke, K. (1956). "Theory of mechanical damping due to dislocations," *Journal of Applied Physics* **27**, 583-593.
- Gremaud, G., and Kustov, S. (1999). "Theory of dislocation-solute atom interactions in solid solutions and related nonlinear anelasticity," *Physical Review B* **60**, 9353.
- Gusev, V., and Tournat, V. (2005). "Amplitude- and frequency-dependent nonlinearities in the presence of thermally-induced transitions in the Preisach model of acoustic hysteresis," *Physical Review B* **72**.
- Guyer, R., Kim, H. A., Derome, D., Carmeliet, J., and TenCate, J. (2011). "Hysteresis in modeling of poroelastic systems: Quasistatic equilibrium," *Physical Review E* **83**, 061408.
- Guyer, R. A., and Johnson, P. A. (1999). "Nonlinear mesoscopic elasticity: Evidence for a new class of materials," *Physics Today* **52**, 30-36.
- Guyer, R. A., and Johnson, P. A. (2009). *Nonlinear Mesoscopic Elasticity: The Complex Behaviour of Rocks, Soil, Concrete* (Wiley-VCH, Weinheim).
- Guyer, R. A., McCall, K. R., and Boitnott, G. N. (1995). "Hysteresis, Discrete Memory, and Nonlinear-Wave Propagation in Rock - a New Paradigm," *Physical Review Letters* **74**, 3491-3494.
- Holcomb, D. J. (1981). "Memory, relaxation, and microfracturing in dilatant rock," *Journal of Geophysical Research* **86**, 6235-6248.
- Hutchison, T., and Rogers, D. (1962). "Ultrasonic Damping at Kilocycle Frequencies in Aluminum at Low Temperatures," *Journal of Applied Physics* **33**, 792-799.
- Inserra, C., Tournat, V., and Gusev, V. (2008). "Characterization of granular compaction by nonlinear acoustic resonance method," *Applied Physics Letters* **92**.
- Jia, X., Brunet, T., and Laurent, J. (2011). "Elastic weakening of a dense granular pack by acoustic fluidization: Slipping, compaction, and aging," *Physical Review E* **84**, 020301.
- Johnson, P., and Sutin, A. (2005). "Slow dynamics and anomalous nonlinear fast dynamics in diverse solids," *Journal of the Acoustical Society of America* **117**, 124-130.
- Johnson, P. A. (1999). "The new wave in acoustic testing," *Materials World* **7**, 544-546.
- Johnson, P. A., and Jia, X. (2005). "Nonlinear dynamics, granular media and dynamic earthquake triggering," *Nature* **437**, 871-874.
- Johnson, P. A., Zinszner, B., Rasolofosaon, P., Cohen-Tenoudji, F., and Van Den Abeele, K. (2004). "Dynamic measurements of the nonlinear elastic parameter alpha in rock under varying conditions," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **109**.
- Johnson, P. A., Zinszner, B., and Rasolofosaon, P. N. J. (1996). "Resonance and elastic nonlinear phenomena in rock," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **101**, 11553-11564.
- Kalidindi, S. R., Zhen, T., and Barsoum, M. W. (2006). "Macroscale constitutive modeling of kinking nonlinear elastic solids," *Materials Science and Engineering a-Structural Materials Properties Microstructure and Processing* **418**, 95-98.
- Kustov, S., Golyandin, S., Ichino, A., and Gremaud, G. (2006). "A new design of automated piezoelectric composite oscillator technique," *Materials Science and Engineering: A* **442**, 532-537.
- Kustov, S., Golyandin, S., Sapozhnikov, K., Vincent, A., Maire, E., and Lormand, G. (2001). "Structural and transient internal friction due to thermal expansion mismatch between

- matrix and reinforcement in Al–SiC particulate composite," *Materials Science and Engineering: A* **313**, 218-226.
- Kustov, S., Gremaud, G., Benoit, W., Golyandin, S., Sapozhnikov, K., Nishino, Y., and Asano, S. (1999). "Strain amplitude-dependent anelasticity in Cu-Ni solid solution due to thermally activated and athermal dislocation-point obstacle interactions," *Journal of Applied Physics* **85**, 1444-1459.
- Lacouture, J. C., Johnson, P. A., and Cohen-Tenoudji, F. (2003). "Study of critical behavior in concrete during curing by application of dynamic linear and nonlinear means," *Journal of the Acoustical Society of America* **113**, 1325-1332.
- Landau, L., and Lifshitz, E. (1986). *Theory of Elasticity*. Pergamon (Oxford, UK).
- Lebedev, A., and Kustov, S. (1989). "Effect of temperature on amplitude-dependent internal friction and yield stress in crystals," *physica status solidi (a)* **116**, 645-656.
- Lebedev, A. B. (1999). "Amplitude-dependent elastic-modulus defect in the main dislocation-hysteresis models," *Physics of the Solid State* **41**, 1105-1111.
- Marx, J. (1951). "Use of the piezoelectric gauge for internal friction measurements," *Review of Scientific Instruments* **22**, 503-509.
- Mason, W. (1956). "Internal friction and fatigue in metals at large strain amplitudes," *The Journal of the Acoustical Society of America* **28**, 1207.
- McCall, K., and Guyer, R. (1996). "A new theoretical paradigm to describe hysteresis, discrete memory and nonlinear elastic wave propagation in rock," *Nonlinear processes in geophysics* **3**, 89-101.
- McCall, K. R., and Guyer, R. A. (1994). "Equation of State and Wave-Propagation in Hysteretic Nonlinear Elastic-Materials," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **99**, 23887-23897.
- Mindlin, R., and Deresiewicz, H. (1953). "Elastic spheres in contact under varying oblique forces," *J. of Appl. Mech.* **20**.
- Moreschi, H., Callé, S., Guerard, S., Mitton, D., Renaud, G., and Defontaine, M. (2011). "Monitoring trabecular bone microdamage using a dynamic acousto-elastic testing method," *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part H: Journal of Engineering in Medicine* **225**, 1-12.
- Moussatov, A., Gusev, V., and Castagnede, B. (2003). "Self-induced hysteresis for nonlinear acoustic waves in cracked material," *Physical Review Letters* **90**.
- Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., Johnson, P., and Laugier, P. (2008). "Nonlinear ultrasound can detect accumulated damage in human bone," *Journal of Biomechanics* **41**, 1062-1068.
- Muller, M., Sutin, A., Guyer, R., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2005). "Nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) applied to damage assessment in bone," *Journal of the Acoustical Society of America* **118**, 3946-3952.
- Muller, M., Tencate, J. A., Darling, T. W., Sutin, A., Guyer, R. A., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2006). "Micro-damage assessment using non-linear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) techniques: A feasibility study," *Ultrasonics* **44**, E245-E249.
- Nazarov, V. (2001a). "Acoustic nonlinearity of cracks partially filled with liquid: Cubic approximation," *The Journal of the Acoustical Society of America* **109**, 2642.
- Nazarov, V., Kolpakov, A., and Radostin, A. (2007). "Experimental study of nonlinear acoustical effects in limestone," *Acoustical Physics* **53**, 217-225.
- Nazarov, V., Kolpakov, A., and Radostin, A. (2010). "Propagation of weak ultrasonic pulses in an intense low-frequency wave field in a granite resonator," *Acoustical Physics* **56**, 453-456.

- Nazarov, V., and Radostin, A. (2008). "Acoustic nonlinearity of water-like materials with partially liquid-filled capillaries," *Acoustical Physics* **54**, 460-463.
- Nazarov, V., Radostin, A., and Soustova, I. (2002). "Effect of an intense sound wave on the acoustic properties of a sandstone bar resonator. Experiment," *Acoustical Physics* **48**, 76-80.
- Nazarov, V. E. (1991a). "NONLINEAR ACOUSTICAL EFFECTS IN ANNEALED COPPER," *Soviet Physics Acoustics-Ussr* **37**, 75-78.
- Nazarov, V. E. (1999). "Amplitude-dependent internal friction of lead," *Fizika Metallov I Metallovedenie* **88**, 82-90.
- Nazarov, V. E. (2001b). "Experimental investigation of amplitude-dependent internal friction of polycrystalline zinc," *Physics of Metals and Metallography* **92**, 592-601.
- Nazarov, V. E., and Kolpakov, A. B. (2000). "Experimental investigations of nonlinear acoustic phenomena in polycrystalline zinc," *Journal of the Acoustical Society of America* **107**, 1915-1921.
- Nazarov, V. E., Kolpakov, A. B., and Radostin, A. V. (2009). "Amplitude dependent internal friction and generation of harmonics in granite resonator," *Acoustical Physics* **55**, 100-107.
- Nazarov, V. E., Ostrovsky, L. A., Soustova, I. A., and Sutin, A. M. (1988). "Nonlinear Acoustics of Micro-Inhomogeneous Media," *Physics of the Earth and Planetary Interiors* **50**, 65-73.
- Nazarov, V. E., Radostin, A. V., Ostrovsky, L. A., and Soustova, I. A. (2003). "Wave processes in media with hysteretic nonlinearity. Part I," *Acoustical Physics* **49**, 344-353.
- Nazarov, V. Y. (1991b). "COPPER STRUCTURE INFLUENCE ON ITS ACOUSTICAL NONLINEARITY," *Fizika Metallov I Metallovedenie*, 172-178.
- Nihei, K., Hilbert Jr, L., Cook, N., Nakagawa, S., and Myer, L. (2000). "Frictional effects on the volumetric strain of sandstone," *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* **37**, 121-132.
- Nobili, M., and Scalerandi, M. (2004). "Temperature effects on the elastic properties of hysteretic elastic media: Modeling and simulations," *Physical Review B* **69**, 104105.
- Nowick, A. S. (1950). "VARIATION OF AMPLITUDE-DEPENDENT INTERNAL FRICTION IN SINGLE CRYSTALS OF COPPER WITH FREQUENCY AND TEMPERATURE," *Physical Review* **80**, 249-257.
- Orowan, E. (1942). "A type of plastic deformation new in metals," *Nature* **149**, 643-644.
- Ostrovsky, L. A., Gurbatov, S. N., and Didenkulov, J. N. (2005). "Nonlinear acoustics in Nizhni Novgorod (A review)," *Acoustical Physics* **51**, 114-127.
- Ostrovsky, L. A., Soustova, I. A., and Sutin, A. M. (1978). "NON-LINEAR AND PARAMETRIC PHENOMENA IN DISPERSIVE ACOUSTIC SYSTEMS," *Acustica* **39**, 298-306.
- Pasqualini, D., Heitmann, K., TenCate, J. A., Habib, S., Higdon, D., and Johnson, P. A. (2007). "Nonequilibrium and nonlinear dynamics in Berea and Fontainebleau sandstones: Low-strain regime," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **112**.
- Patil, S. D., Narasimhan, R., and Mishra, R. K. (2009). "Observation of kink shear bands in an aluminium single crystal fracture specimen," *Scripta Materialia* **61**, 465-468.
- Payan, C., Garnier, V., and Moysan, J. (2010). "Effect of water saturation and porosity on the nonlinear elastic response of concrete," *Cement and Concrete Research* **40**, 473-476.
- Payan, C., Garnier, V., Moysan, J., and Johnson, P. A. (2007). "Applying nonlinear resonant ultrasound spectroscopy to improving thermal damage assessment in concrete," *Journal of the Acoustical Society of America* **121**, EL125-EL130.

- Pecorari, C. (2004). "Adhesion and nonlinear scattering by rough surfaces in contact: Beyond the phenomenology of the Preisach–Mayergoyz framework," *The Journal of the Acoustical Society of America* **116**, 1938.
- Quimby, S. L. (1925). "On the experimental determination of the viscosity of vibrating solids," *Physical Review* **25**, 558.
- Read, T. A. (1940). "The internal friction of single metal crystals," *Physical Review* **58**, 371-380.
- Read, T. A. (1941). "Internal friction of single crystals of copper and zinc," *Met Technol* **8**, 1-12.
- Renaud, G., Calle, S., Remenieras, J. P., and Defontaine, M. (2008). "Non-linear acoustic measurements to assess crack density in trabecular bone," *International Journal of Non-Linear Mechanics* **43**, 194-200.
- Renaud, G., Talmant, M., Callé, S., Defontaine, M., and Laugier, P. (2011). "Nonlinear elastodynamics in micro-inhomogeneous solids observed by head wave based dynamic acoustoelastic testing," *J. Acoust. Soc. Am.* **130**.
- Robinson, W., Carpenter, S., and Tallon, J. (1974). "Piezoelectric method of determining torsional mechanical damping between 40 and 120 kHz," *Journal of Applied Physics* **45**, 1975-1981.
- Sapozhnikov, K., Golyandin, S., and Kustov, S. (2010a). "Amplitude dependence of the internal friction and Young's modulus defect of polycrystalline indium," *Physics of the Solid State* **52**, 43-48.
- Sapozhnikov, K., Golyandin, S., and Kustov, S. (2010b). "Temperature dependence of the internal friction of polycrystalline indium," *Physics of the Solid State* **52**, 2501-2509.
- Scalerandi, M., Gliozzi, A., Bruno, C., and Antonaci, P. (2010). "Nonequilibrium and hysteresis in solids: Disentangling conditioning from nonlinear elasticity," *Physical Review B* **81**, 104114.
- Sharma, M. M., and Tutuncu, A. N. (1994). "Grain contact adhesion hysteresis: A mechanism for attenuation of seismic waves," *Geophysical research letters* **21**, 2323-2326.
- Solodov, I., Pfleiderer, K., and Busse, G. (2006). "Nonlinear acoustic NDE: inherent potential of complete nonclassical spectra," *Universality of Nonclassical Nonlinearity*, 467-486.
- Solodov, I. Y. (1998). "Ultrasonics of non-linear contacts: propagation, reflection and NDE-applications," *Ultrasonics* **36**, 383-390.
- Solodov, I. Y., Krohn, N., and Busse, G. (2002). "CAN: an example of nonclassical acoustic nonlinearity in solids," *Ultrasonics* **40**, 621-625.
- Tencate, J. A. (2011). "Slow Dynamics of Earth Materials: An Experimental Overview," *Pure and Applied Geophysics*, 1-9.
- TenCate, J. A., and Shankland, T. J. (1996). "Slow dynamics in the nonlinear elastic response of Berea sandstone," *Geophysical Research Letters* **23**, 3019-3022.
- TenCate, J. A., Smith, E., and Guyer, R. A. (2000). "Universal slow dynamics in granular solids," *Physical review letters* **85**, 1020-1023.
- Tournat, V., and Gusev, V. (2010). "Acoustics of Unconsolidated Model Granular Media: An Overview of Recent Results and Several Open Problems," *Acta Acustica united with Acustica* **96**, 208-224.
- Tutuncu, A. N., Podio, A. L., and Sharma, M. M. (1998). "Nonlinear viscoelastic behavior of sedimentary rocks, Part II: Hysteresis effects and influence of type of fluid on elastic moduli," *Geophysics* **63**, 195-203.
- Vakhnenko, O. O., Vakhnenko, V. O., and Shankland, T. J. (2005). "Soft-ratchet modeling of end-point memory in the nonlinear resonant response of sedimentary rocks," *Physical Review B* **71**, 174103.

- Van Den Abeele, K. (2007). "Multi-mode nonlinear resonance ultrasound spectroscopy for defect imaging: An analytical approach for the one-dimensional case," *Journal of the Acoustical Society of America* **122**, 73-90.
- Van Den Abeele, K., Campos-Pozuelo, C., Gallego Juárez, J. A., Windels, F., and Bollen, B. (2002a). "Analysis of the nonlinear reverberation of titanium alloys fatigued at high amplitude ultrasonic vibration."
- Van den Abeele, K., and De Visscher, J. (2000). "Damage assessment in reinforced concrete using spectral and temporal nonlinear vibration techniques," *Cement and Concrete Research* **30**, 1453-1464.
- Van den Abeele, K., Johnson, P. A., and Sutin, A. (2000a). "Nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS) techniques to discern material damage, part I: Nonlinear wave modulation spectroscopy (NWMS)," *Research in Nondestructive Evaluation* **12**, 17-30.
- Van den Abeele, K., Van de Velde, K., and Carmeliet, J. (2001). "Inferring the degradation of pultruded composites from dynamic nonlinear resonance measurements," *Polymer Composites* **22**, 555-567.
- Van Den Abeele, K. E. A., Carmeliet, J., Johnson, P., and Zinszner, B. (2002b). "Influence of water saturation on the nonlinear elastic mesoscopic response in Earth materials and the implications to the mechanism of nonlinearity," *Journal of Geophysical Research (Solid Earth)* **107**, 2121.
- Van den Abeele, K. E. A., Carmeliet, J., Ten Cate, J. A., and Johnson, P. A. (2000b). "Nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS) techniques to discern material damage, Part II: Single-mode nonlinear resonance acoustic spectroscopy," *Research in Nondestructive Evaluation* **12**, 31-42.
- Van den Abeele, K. E. A., Johnson, P. A., and Sutin, A. (2000c). "Nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS) techniques to discern material damage, part I: Nonlinear wave modulation spectroscopy (NWMS)," *Research in Nondestructive Evaluation* **12**, 17-30.
- Van Den Abeele, K. E. A., Sutin, A., Carmeliet, J., and Johnson, P. A. (2001). "Micro-damage diagnostics using nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS)," *Ndt & E International* **34**, 239-248.
- Walsh, J. (1966). "Seismic wave attenuation in rock due to friction," *Journal of Geophysical Research* **71**, 2591-2599.
- Zaitsev, V., Gusev, V., and Castagnede, B. (2003). "Thermoelastic mechanism for logarithmic slow dynamics and memory in elastic wave interactions with individual cracks," *Physical review letters* **90**, 75501.
- Zaitsev, V. Y., and Matveev, L. (2006). "Microinhomogeneous medium, elastic nonlinearity, linear dissipation, amplitude dependent dissipation," *Russian Geology and Geophysics* **47**, 694-709.
- Zaitsev, V. Y., and Matveev, L. A. (2012). *Giant strain-sensitivity of acoustic energy dissipation in solids containing dry and saturated cracks with wavy interfaces.*
- Zaitsev, V. Y., and Sas, P. (2000). "Dissipation in microinhomogeneous solids: inherent amplitude-dependent attenuation of a non-hysteretical and non-frictional type," *Acustica-Acta Acustica* **86**, 429-445.
- Zarembko, L. K., and Krasilni.Va (1971). "NONLINEAR PHENOMENA IN PROPAGATION OF ELASTIC WAVES IN SOLIDS," *Soviet Physics Uspekhi-Ussr* **13**, 778-&.
- Zener, C. (1948). *Elasticity and anelasticity of metals* (University of Chicago Press).

- Zhang, J., Perez, R. J., Wong, C. R., and Lavernia, E. J. (1994). "Effects of secondary phases on the damping behaviour of metals, alloys and metal matrix composites," *Materials Science and Engineering: R: Reports* **13**, 325-389.
- Zinszner, B., Johnson, P. A., and Rasolofosaon, P. N. J. (1997). "Influence of change in physical state on elastic nonlinear response in rock: Significance of effective pressure and water saturation," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **102**, 8105-8120.

Chapitre 3.

LE CONTROLE NON DESTRUCTIF PAR L'ACOUSTIQUE NON-LINEAIRE (TECHNIQUE)

Comment prévenir la rupture d'un barrage, le crash d'un avion ou bien les fuites radioactives d'une centrale nucléaire ? Une partie essentielle de la stratégie de prévention de ces catastrophes passe par la mise au point de techniques d'évaluation structurelle des matériaux de plus en plus précises et sensibles. Comme il n'est pas envisageable de faire des tests destructifs sur les matériaux *in-situ*, l'élaboration d'un **contrôle non-destructif** (CND) efficace des matériaux est primordiale. Parmi les nouvelles techniques émergentes, les techniques d'acoustiques non-linéaires sont très prometteuses. Elles ont l'avantage d'être non-invasives mais aussi d'être sensibles à un changement précoce des propriétés élastiques des matériaux, lié à l'accumulation d'endommagement ou à la présence d'une microfissure fermée impossible à détecter autrement. Il est en effet essentiel de détecter le plus tôt possible l'initiation d'une fracture qui pourrait mettre en péril le fonctionnement de dispositifs aussi sensibles qu'une centrale nucléaire.

Les techniques d'acoustique non-linéaires mesurent la réponse non-linéaire du matériau au passage d'une onde acoustique. Cette réponse dépend de la présence de micro-défauts, ou d'inhomogénéité souples (microfissures, dislocations, contact de grain, délaminations...) qui agissent comme des sources non-linéaires classique et/ou non classique (voir chapitre 2) affectant le niveau de non-linéarité globale du matériau. La non-linéarité classiques d'origine interatomique du matériau est négligeable comparée à celle produite par les micro-défauts. La non-linéarité globale combine alors une élasticité non-linéaire « classique » et « non classique » produite uniquement par les micro-défauts. Elle se manifeste tout d'abord par l'apparition d'harmoniques dans la réponse acoustique. Cet effet a été mis en évidence pour la première fois lors du passage d'une onde ultrasonore entre deux solides en contact (Buck and Morris, 1978). Ils mesurèrent l'apparition d'harmoniques dont l'amplitude était directement reliée à l'amplitude d'excitation ainsi qu'à la qualité du contact entre les deux solides. L'année d'après, ils mirent en évidence que l'augmentation de la

seconde harmonique était associée à l'état de fatigue d'un morceau d'aluminium (Morris *et al.*, 1979). C'est ainsi que la détection des harmoniques est devenue la première technique de référence pour le CND par acoustique non-linéaire. Par la suite, d'autres phénomènes ont été découverts, comme la création de sous-harmoniques, le mélange de fréquence ainsi que le décalage en fréquence. De nouvelles techniques faisant intervenir des phénomènes encore mal compris font leur apparition comme les techniques basées sur l'effet Luxembourg-Gorky et la technique d'acousto-élasticité dynamique.

Après un bref aperçu des techniques de CND par acoustique non-linéaire (pour plus de détails, voir les revues de (Zheng *et al.*, 1999; Ostrovsky and Johnson, 2001; Jhang, 2009), nous verrons quelles sont les différentes stratégies existantes pour tenter de localiser les microfissures. Ensuite, nous ferons un état des lieux de l'évaluation qualitative et surtout quantitative de l'accumulation du micro-endommagement lors de tests de fatigue ou de propagation d'une microfissure. Enfin, nous décrirons les quelques tentatives d'évaluation du micro-endommagement osseux par acoustique non-linéaire.

3.1 Aperçus des techniques

3.1.1 Génération d'harmoniques (harmonique, sous-harmonique, mélange de fréquence)

Génération d'harmoniques

La génération d'harmoniques est le phénomène non-linéaire le plus connu de l'acoustique non-linéaire. Lorsqu'une onde incidente de forte intensité (déformation comprise entre 10^{-6} et 10^{-4}) traverse un milieu ayant des propriétés élastiques non-linéaires, l'onde change localement et dynamiquement l'élasticité du milieu. Ainsi, dans la zone localement en compression, la vitesse de l'onde c augmente et devient supérieure à la vitesse de l'onde initiale v_0 ($v > v_0$) tandis que dans la zone localement en tension, c'est l'inverse $v < v_0$ (Fig.1). Sous cet effet auto-induit, l'onde se déforme et voit son spectre s'enrichir de nouvelles fréquences, ce sont les harmoniques. Lorsque l'onde d'excitation est monochromatique de fréquence f , la réponse contient des fréquences multiples de f : $2f, 3f...$ Ce phénomène est appelé cascade d'harmoniques car la fréquence fondamentale donne naissance à la seconde harmonique ($f+f = 2f$), la seconde harmonique se combine avec la fondamentale pour donner la troisième harmonique ($f+2f = 3f$) et ainsi de suite. Notons tout de suite que par abus de langage, la seconde et la troisième harmonique sont dans les faits la première et la seconde

harmonique. Par soucis de compréhension, nous numérotions les harmoniques suivant leur facteur multiplicateur (par exemple, la seconde harmonique correspond à 2 fois la fréquence fondamentale).

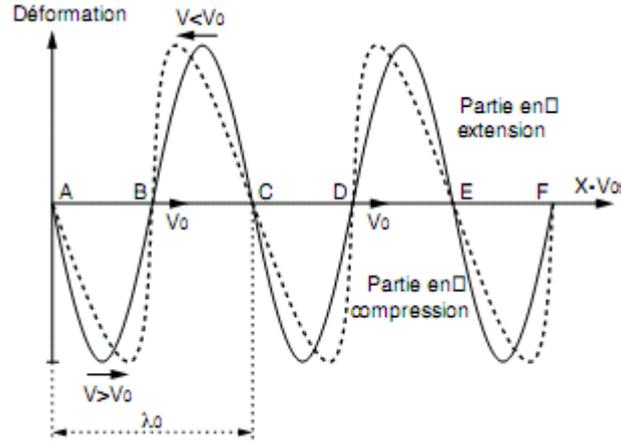


Figure 1 : Evolution de l'état vibratoire (déformation) d'un milieu en fonction de la distance réduite $(X - v_0 t)$ à la source (l'observateur suit l'onde avec la vitesse v_0 des ondes de faible perturbation). Le trait plein correspond au cas de linéarité parfaite et le trait pointillé au cas de présence de non-linéarité. Extrait de (Rasolofosaon *et al.*, 1997)

Le module non-linéaire K combinant les paramètres non-linéaires classiques issus de la théorie de Landau peut s'exprimer à travers la relation contrainte-déformation à une dimension par :

$$\sigma = K_0 (\varepsilon - \beta \varepsilon^2 - \delta \varepsilon^3 + \dots) \quad (3.1)$$

Avec K_0 , le module linéaire, σ la contrainte, ε la déformation et β et δ , représentant respectivement les non-linéarités classiques quadratique et cubique.

Si la déformation est une onde monochromatique de pulsation ω et d'amplitude initiale ε_0 , le signal mesuré $S(t)$ en sortie en régime stationnaire peut se déduire de l'Eq. 3.1 :

$$S(t) = \varepsilon_0 \cos(\omega t) - \beta (\varepsilon_0 \cos(\omega t))^2 - \delta (\varepsilon_0 \cos(\omega t))^3 + \dots \quad (3.2)$$

Soit après simplification trigonométrique :

$$S(t) = \varepsilon_0 \left(1 - \beta \frac{\varepsilon_0}{2} - \delta \frac{3\varepsilon_0^2}{4} \right) \cos(\omega t) - \frac{\beta}{2} \varepsilon_0^2 \cos(2\omega t) - \frac{\delta}{4} \varepsilon_0^3 \cos(3\omega t) + \dots \quad (3.3)$$

On remarque tout d'abord que la composante fondamentale ω , d'amplitude initiale ε_0 , n'est pas constante mais décroît suivant une loi polynomiale dont les deux premiers

coefficients dépendent de β et δ . Il est important de noter que cette décroissance n'est pas liée à de la dissipation non-linéaire mais qu'elle est simplement due au mécanisme de cascade harmonique. En pratique, cette décroissance est négligée car la valeur des produits $\beta\epsilon_0$ et $\delta\epsilon_0^2$ est négligeable par rapport à 1 (ϵ_0 est de l'ordre de 10^{-5} et β et δ sont de l'ordre de 10 et 10^6 respectivement). On remarque ensuite que le spectre du signal $S(t)$ contient en plus de la fréquence fondamentale (f), deux autres fréquences ($2f$ et $3f$) dont l'amplitude est proportionnelle à l'amplitude du signal émis (ϵ_0) élevée au carré et au cube respectivement. Les coefficients de proportionnalité sont les paramètres non-linéaires quadratique β (pour la seconde harmonique $2f$) et cubique δ (pour la troisième harmonique $3f$). D'un point de vue pratique, l'extraction de ces paramètres est réalisée à partir de la relation entre l'amplitude du fondamental et de leur harmonique respective:

$$U_{2f} \cong \beta U_f^2 \quad (3.4) \quad \text{et} \quad U_{3f} \cong \delta U_f^3 \quad (3.5)$$

Avec U_f , U_{2f} et U_{3f} , respectivement l'amplitude de la fréquence fondamentale, de la seconde et de la troisième harmonique. Notons que les Eqs. 3.4 et 3.5 ne donnent pas directement accès aux valeurs intrinsèques β et δ du matériau mais à des approximations car elles ne prennent pas en compte la distance de propagation ainsi que le nombre d'onde.

Dans le cas d'une non-linéarité non-classique (voir chapitre 2), un autre paramètre est nécessaire pour décrire la relation non-linéaire entre la contrainte et la déformation. On nomme ce paramètre α . A partir de l'Eq. 2.8 décrite dans le chapitre 2, il a été montré que lors de la propagation d'une onde monochromatique, la non-linéarité non classique ne produit que des harmoniques impaires (3, 5, 7..., soit $2n-1$ avec $n \geq 2$) (McCall and Guyer, 1994; Guyer *et al.*, 1995) et que leur amplitude était proportionnelle au carré de l'amplitude fondamentale (Van den Abeele *et al.*, 2000b):

$$U_{(2n-1)f} \cong \alpha U_f^2 \quad (3.6)$$

En pratique, dans les matériaux endommagés, les deux types de non-linéarités sont présents et les harmoniques suivent une combinaison des relations décrites par les Eqs. 3.4, 3.5 et 3.6. Néanmoins, il semble que la troisième harmonique (et les suivantes) suive généralement une loi quadratique de l'amplitude d'excitation, plutôt que cubique, synonyme d'une non-linéarité non classique prépondérante (Meegan Jr *et al.*, 1993; Van Den Abeele and Johnson, 1996). Il arrive aussi que la troisième harmonique (et les suivantes) suivent une loi

de puissance $n=3/2$, si un clappement de type contact de Hertz se produit au niveau des lèvres de la microfissure (Fillinger *et al.*, 2006; Zaitsev *et al.*, 2011). Remarquons qu'expérimentalement, la variabilité des données et la faible plage de déformation ne permet pas de conclure avec certitude quant à la loi de puissance (quadratique ($n=2$) ou $n=3/2$) approchant le mieux les données.

L'étude des harmoniques a été utilisée dans de nombreux domaines (roche (Meegan Jr *et al.*, 1993), métaux endommagés (Frouin *et al.*, 1999; Cantrell and Yost, 2001), béton (Lacouture *et al.*, 2003; Van den Abeele *et al.*, 2009a)), en propagation (Breazeale and Thompson, 1963; Meegan Jr *et al.*, 1993) comme en résonance (Johnson *et al.*, 1996). Son principal inconvénient vient du fait que les harmoniques ne proviennent pas uniquement des non-linéarités élastiques du milieu traversé mais aussi de l'électronique du système d'investigation. Ainsi, sans calibration préalable du dispositif expérimentale à l'aide d'un matériau linéaire, il est impossible de séparer la contribution provenant de l'endommagement du matériau des distorsions électroniques.

Mélange de fréquences

Pour s'affranchir de ce problème, une technique, toujours basée sur les distorsions du signal propagé, est de plus en plus employée (Straka *et al.*, 2008; Zagrai *et al.*, 2008). Elle fait intervenir le principe d'interaction onde-onde (Van den Abeele *et al.*, 2000b; Donskoy *et al.*, 2001) qui n'est rien d'autre que la généralisation du processus de génération d'harmoniques. Ainsi, lorsque deux ondes monochromatiques traversent un matériau non-linéaire, le mécanisme de cascade d'harmoniques identique à celui présenté pour une onde monochromatique seule se met en place. Or cette fois-ci, les harmoniques se mélangent pour donner naissance à des fréquences sommes et différences (f_1+f_2 , f_2-f_1) en plus des harmoniques évoquées précédemment ($2f_1$, $2f_2$, $3f_1$, $3f_2\dots$). Le mélange de fréquences [en anglais «*frequency mixing*»] a l'avantage de pouvoir séparer les contributions non-linéaires issues du matériau de celles créées par l'électronique. En effet, les fréquences sommes et différences ont comme origine unique, les interactions dans le matériau, aucune interaction n'a pu se faire dans l'électronique. Il faut toutefois préciser que pour éviter tout mélange de fréquence électronique en amont, la génération et l'amplification des deux ondes monochromatiques doivent être gérées par deux dispositifs bien séparés électriquement.

Comme dans le cas particulier de la génération d'harmoniques, les fréquences analysées portent de l'information sur la non-linéarité classique quadratique β et cubique δ ou non-classique quadratique α . Ainsi on démontre facilement, que la fréquence somme ou différence « simple » ($f_1 \pm f_2$) est reliée à β suivant l'équation :

$$U_{f_1 \pm f_2} \cong \beta U_{f_1} U_{f_2} \quad (3.7)$$

De même, le paramètre non-linéaire α est associé à la fréquence somme ou différence « double » suivant l'équation :

$$U_{f_1 \pm 2f_2} \cong \alpha U_{f_1} U_{f_2} \quad (3.8)$$

Enfin notons que le mélange de fréquence pourrait aussi être associé à des phénomènes purement dissipatifs (Zaitsev and Sas, 2000; Zaitsev *et al.*, 2011) différents de la non-linéarité élastique classique ou non classique. L'origine de quelques uns de ces phénomènes est décrite dans le paragraphe 2.3.3.

Expérimentalement, le mélange de fréquence peut se faire de plusieurs façons. La méthode la plus courante consiste à envoyer deux ondes monochromatiques et à analyser les fréquences somme ou différence qui se situent sur ce qu'on appelle des raies latérales [en anglais « *side lobes* »]. Les ondes peuvent avoir des hautes fréquences (HF) proches. Dans ce cas, les fréquences analysées seront généralement les fréquences différences basses fréquences (BF). Les fréquences sommes seront quant à elles très vite atténuées et donc rarement exploitables. Cette propriété non-linéaire des matériaux est utilisée par les antennes paramétriques qui permettent de propager sur de longue distance des ondes BF ayant les propriétés directives des ondes HF dont elles sont issues (Tournat, 2003). Lorsque le mélange de fréquence fait intervenir un signal HF et un signal BF parfois aussi appelé « vibration », les raie latérales correspondant aux fréquences sommes et différences autour du pic HF seront analysées. Cette méthode est alors désignée par méthode vibro-acoustique non-linéaire (Donskoy and Sutin, 1998). Enfin, une autre méthode simple à mettre en œuvre, consiste à générer le signal BF de forte amplitude en « tapant » sur le matériau à analyser. De cette manière, les fréquences de résonance du système sont préférentiellement excitées (Van den Abeele *et al.*, 2000b; Donskoy *et al.*, 2001; Ulrich *et al.*, 2007b; Chen *et al.*, 2008; Payan *et al.*, 2010). Toutes ces méthodes sont généralement regroupées sous l'appellation « *Nonlinear wave modulation spectroscopy* » (NWMS) qui est un sous-domaine des techniques

spectroscopiques non-linéaire désignée sous le nom de « *Nonlinear elastic wave spectroscopy* » (NEWS) (Guyer and Johnson, 1999; Johnson, 1999; Van den Abeele *et al.*, 2000b; Van Den Abeele *et al.*, 2001).

Génération de sous-harmoniques

Enfin notons que la présence d'harmoniques s'accompagne parfois de la génération de sous-harmoniques ($f/2$, $3f/2$, $f/3$, $2f/3$, ...) pouvant conduire à un comportement quasi-chaotique (Solodov *et al.*, 2004). Ce phénomène n'est présent que lorsqu'un clappement a lieu entre deux surfaces en contact faiblement contraintes. A mesure que les deux surface, comme les bords d'une fissure fermée, sont de plus en plus comprimées, le seuil de déformation nécessaire pour activer les sous-harmoniques augmente (Solodov, 1998; Solodov *et al.*, 2002; Moussatov *et al.*, 2003). Les techniques basées sur les sous-harmoniques ont l'avantage d'être exclusive car les sous-harmoniques ne peuvent pas être produites par les non-linéarités du dispositif électronique ni par les non-linéarités atomiques classiques du matériau.

3.1.2 Résonance non-linéaire (NRUS, NRS et impact)

La technique de spectroscopie par résonance ultrasonore non-linéaire [en anglais « *nonlinear resonant ultrasound spectroscopy* » (NRUS)] fait partie des méthodes NEWS vues précédemment. C'est une extension de la technique de spectroscopie par résonance ultrasonore (RUS) (Visscher *et al.*, 1991; Migliori *et al.*, 1993), dédiée à l'évaluation du tenseur élastique d'un matériau à partir des propriétés de ses résonances. En NRUS, une seule résonance est généralement étudiée. Si le matériau contient des inhomogénéités souples telles que des microfissures ou des dislocations, la fréquence de résonance du matériau décroît lorsque l'amplitude d'excitation augmente. Le matériau s'assouplit (son module élastique décroît). Si le matériau est de type non-linéaire hystérétique quadratique, la dépendance en amplitude de la variation relative du décalage fréquentiel est linéaire en fonction de l'amplitude, le coefficient de proportionnalité est α_f . Comme la technique NRUS est basée sur la résonance du matériau, le facteur de perte du matériau qui est inversement proportionnel au facteur de qualité Q ($Q = \delta f/f$ avec δf égale à la largeur à mi-hauteur du pic de résonance) peut être déterminé. Il est ainsi possible d'extraire la non-linéarité dissipative d'origine élastique à partir de la variation de Q^{-1} lorsque le niveau de déformation augmente. Cette relation est linéaire pour un matériau non-linéaire non classique. Le coefficient de proportionnalité est α_Q . Les paramètres α_f et α_Q sont de même nature que le paramètre α présenté dans le paragraphe

précédent. Par contre la technique NRUS permet de distinguer la contribution de la partie imaginaire (dissipation) de la partie réelle (élastique). Un aperçu exhaustif des modèles, des équations et des mécanismes à l'origine de la non-linéarité non classique est présenté au chapitre 2.

Expérimentalement, Il existe plusieurs façons d'exciter les résonances et mesurer les paramètres non-linéaires. La méthode la plus courante consiste à sonder les matériaux par un balayage fréquentiel autour d'une de leur fréquence de résonance (en général le 1^{er} mode de barreau (Nazarov, 2001; Nazarov *et al.*, 2007; Pasqualini *et al.*, 2007) ou le 1^{er} mode de flexion (Van den Abeele *et al.*, 2001b)), en augmentant progressivement le niveau de déformation (typiquement entre 10^{-6} et 10^{-4}). L'excitation est généralement réalisée à l'aide d'un élément piezo-électrique parfaitement bien collé à l'une des extrémités de l'échantillon. Parfois l'échantillon est excité sans contact, à l'aide d'un haut-parleur (Van den Abeele *et al.*, 2000a; Van den Abeele *et al.*, 2001a). Il est aussi possible d'exciter les modes de résonance en tapant sur le matériau à l'aide d'un marteau (Chen *et al.*, 2010). Cette technique a l'avantage de nécessiter un appareillage plus simple et de ne faire aucun a priori sur le type de modes excités, idéal pour des structures de géométrie complexe, par contre il est impossible de remonter à la valeur intrinsèque de la non-linéarité α . Pour finir, une méthode appelée spectroscopie par réverbération non linéaire [en anglais « *nonlinear reverberation spectroscopy* » (NRS)] consiste à exciter le matériau à sa fréquence de résonance (Van den Abeele and De Visscher, 2000; Van den Abeele *et al.*, 2009b). Lorsque le régime stationnaire est atteint, l'excitation forcée est coupée. Le matériau retourne alors progressivement à son état d'équilibre initial. Au cours de la relaxation, l'amplitude de vibration du matériau décroît ce qui va provoquer une augmentation de sa fréquence de résonance et une diminution de son atténuation. Cette technique est séduisante car plus rapide que les méthodes de résonance classiques (une seule acquisition est nécessaire) mais n'est opérationnelle que pour des matériaux peu atténuants. En effet, elle nécessite une réduction progressive de l'amplitude afin d'avoir suffisamment de cycles (environ une dizaine) pour pouvoir approximer le signal par un sinus à décroissance exponentielle. Cette technique est difficilement envisageable dans des matériaux aussi atténuants que l'os ($Q \approx 30-50$ (Lakes, 2009)).

Pour conclure, les techniques basées sur la résonance ont plusieurs avantages comparés aux méthodes basées sur la génération d'harmonique. Tout d'abord, puisqu'on est sur une résonance du système, il suffit d'injecter peu d'énergie pour produire de fortes déformations. Ensuite, elles ont l'avantage de donner accès directement aux deux non-

linéarités (élastique et dissipative) non-classiques du matériau lorsque la non-linéarité cubique δ est négligeable (ce qui est presque toujours le cas en pratique). Les mesures ne sont pas perturbées par les non-linéarités de l'électronique, ni par la non-linéarité atomique (la contribution non-linéaire quadratique β n'est pas présente en résonance et la non-linéarité cubique δ est souvent négligeable) qui limitent la sensibilité ultime des techniques de modulation de fréquence (Zaitsev *et al.*, 2011). Le choix de la fréquence est uniquement dicté par la résonance à étudier. Les résultats sont en principe indépendants de la fréquence en l'absence de conditionnement ou de relaxation (voir paragraphe 2.3.3), mais peuvent par contre dépendre du mode de résonance (ordre (mode 1, 2...)) et du type de résonance (compression, flexion, torsion...) ce qui peut aussi s'avérer être un avantage lorsqu'on souhaite caractériser l'endommagement (voir paragraphe 3.1.4 : localisation de l'endommagement). La non-linéarité mesurée en résonance ne dépend pas de la bande passante comme c'est le cas pour les techniques basées sur la génération d'harmoniques (simples ou mélangées) (voir Fig.2). Le principal inconvénient de la méthode de résonance est la résonance elle-même. Il faut que celle-ci soit bien identifiée et séparée des autres résonances (pas de recouvrement), ce qui nécessite des géométries d'échantillon bien contrôlées.

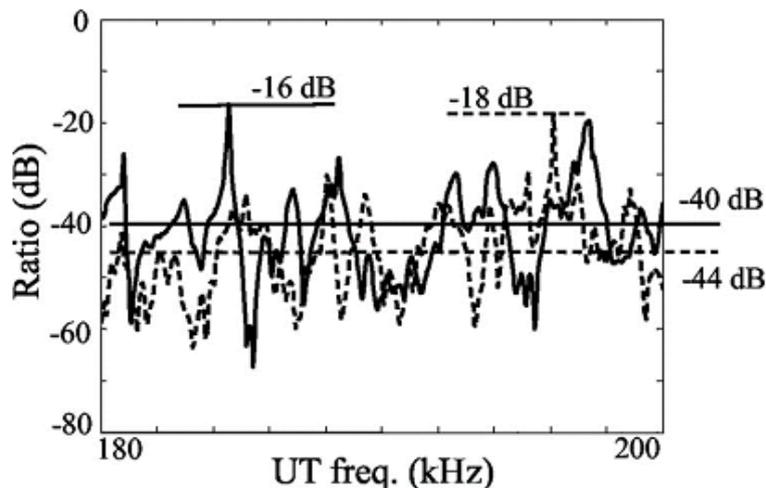


Figure 2 : Ratio (= coefficient de non-linéarité) entre l'amplitude de la seconde harmonique et l'amplitude fondamentale sur une bande passante comprise entre 180 et 200kHz. En trait plein : échantillon d'aluminium endommagé ; en pointillé : échantillon d'aluminium intact. On remarque que le coefficient de non-linéarité de l'aluminium varie ± 40 dB suivant la fréquence alors qu'il devrait être constant. La variation du coefficient de non-linéarité est principalement due à la variation de la bande passante du système. Extrait de (Duffour *et al.*, 2006)

3.1.3 Techniques émergentes

Le transfert de modulation d'amplitude est une technique relativement récente (Zaitsev *et al.*, 2002; Zaitsev *et al.*, 2006). Elle est aussi appelée effet Luxembourg-Gorky car elle est la transposition aux ondes élastiques d'un phénomène détecté pour la première fois lors de propagation d'ondes électromagnétiques entre le jardin du Luxembourg à Paris et Gorky en Russie. Le transfert de modulation suit les mêmes règles que le mélange de fréquence, c'est-à-dire que le signal basse fréquence Ω modulant l'onde « pompe » (de fréquence f_1) se mélange au signal haute fréquence f_2 de l'onde « sonde » faisant apparaître des raies latérales $f_2 \pm n\Omega$ (n est un entier) autour du pic de fréquence f_2 . Bien que le transfert de modulation produit les mêmes résultats que le mélange de fréquence traditionnel, il semblerait que les causes soient différentes (cause thermo-élastique (Zaitsev *et al.*, 2002)). Au lieu d'avoir une non-linéarité d'origine purement élastique, le transfert de modulation serait lié à un phénomène purement dissipatif. Cette hypothèse se base sur les quelques expériences qui ont montrée que lorsque l'onde sonde se situe sur une résonance du matériau, le transfert de modulation n'affecte que le facteur de qualité sans modifier la fréquence de résonance (Zaitsev *et al.*, 2002; Zaitsev *et al.*, 2006). Dans cette expérience, il se peut que la baisse de l'amplitude de résonance soit surtout associée à la répartition de l'énergie sur les raies latérales issues de la cascade d'harmoniques (voir le paragraphe 3.1.1).

Une autre technique, plus récente, propose d'observer les phénomènes non-linéaires sous un autre jour, sans *a-priori* sur la physique des phénomènes observés. Cette technique s'appelle l'acousto-élasticité dynamique [en anglais « *Dynamic acousto-elastic technique* » (DAET)]. C'est une variante de l'acousto-élasticité quasi-statique (Hamilton and Blackstock, 1998) qui a prouvé son attrait dans l'évaluation précise des constantes élastiques du 2^{ème} et 3^{ème} ordre (Winkler and Liu, 1996). Avec le DAET, l'application de la contrainte est générée dynamiquement en excitant un mode de résonance du matériau (Renaud *et al.*, 2011) ou en appliquant une contrainte basse fréquence (BF) (quelques Hertz) de forte amplitude à l'aide d'un émetteur piézo-électrique (Gremaud *et al.*, 1987) ou d'un dispositif mécanique (Nagy, 1998). A chaque niveau de contrainte, l'élasticité non-linéaire du matériau est « lus » par une onde sonde haute fréquence (HF) de faible amplitude. La variation de la vitesse de propagation et de l'atténuation de l'onde sonde est proportionnelle à la variation du module élastique et du facteur de perte du matériau. L'avantage du DAET sur les précédentes techniques conventionnelles (harmonique et résonance) est d'avoir accès à la variation

relative instantanée du module élastique au cours d'un cycle de déformation ($\Delta K/K = f(\varepsilon)$) de l'excitation BF au lieu d'avoir seulement accès à la variation moyenne. De même, le DAET permet d'avoir accès à la variation de l'atténuation au cours de ce même cycle de déformation ($\Delta Q^{-1} = f(\varepsilon)$). Il est ainsi possible de distinguer l'asymétrie des variations du module ou de l'atténuation entre les zones de compression et de tension, ainsi que l'hystérésis entre les phases de compression et de tension (suivant le sens de la contrainte). Cette technique a montré qu'elle était sensible à l'endommagement progressif (fatigue) de divers matériaux (polymère et métaux) (Nagy, 1998) ainsi que des échantillons d'os trabéculaire (Moreschi *et al.*, 2011).

Enfin citons l'existence d'autres techniques plus pragmatiques permettant de prendre en compte tout ou partie des non-linéarités contenues dans le signal (non-linéarité élastique et dissipative, classique et non classique, fondamental et harmoniques). Ces techniques sont l'inversion d'impulsion et ses dérivées [en anglais « *Pulse inversion* »] (Frinking *et al.*, 2000), la soustraction après mises à l'échelle [en anglais « *Scaling Subtraction Method* »] (SSM) (Bruno *et al.*, 2009) et l'intercorrélation des signaux (Tournat and Gusev, 2009; Jia *et al.*, 2011). Pour plus de détails, voir la thèse de Jacques Rivières (Rivière *et al.*, 2010).

3.2 Localisation de microfissures

3.1.4 Approche multimodale

La technique de résonance NRUS nécessite la connaissance l'amplitude de la déformation maximale $\Delta\varepsilon$ appliquée à l'échantillon à chaque niveau d'excitation. Pour des raisons pratiques, la déformation moyenne est généralement calculée à partir du déplacement (de la vitesse ou de l'accélération) particulière d'un point situé à l'extrémité de l'échantillon, par exemple sur la face opposée à la face excitée par la pastille piézo-électrique. Cette déformation moyenne masque l'inhomogénéité du champ de déformation dans l'échantillon. En effet, suivant les conditions aux limites de la résonance (souvent libre-libre (Johnson and Sutin, 2005) ou encastrée-libre (Nazarov *et al.*, 2007), le champ de déformation varie, modifiant la position des nœuds et des ventres de vibration tout comme leur nombre. Ainsi, dans le cas extrême où un hystéron (microfissure ou dislocation) à l'origine du comportement hystérétique du matériau se trouve sur un nœud de déformation, la vibration de l'échantillon ne pourra pas l'exciter et aucun comportement hystérétique ne sera mesuré. On comprend

donc aisément que dans le cas d'une répartition inhomogène des hystérons, la non-linéarité globale du matériau dépend du champ de déformation du mode excité.

La description théorique de la dépendance modal des paramètres non-linéaire a été récemment décrite pour un barreau (1-D) en conditions libre-libre (Van den Abeele, 2007) et encastrée-libre (Liu *et al.*, 2010). Le décalage en fréquence peut être analytiquement exprimé dans les deux cas par l'équation suivante :

$$\frac{\Delta f}{f_0} \approx \bar{\alpha} * \left(1 + \frac{4}{3\pi Q}\right) * |\sin^3(k_{res}x_d)| \Delta \varepsilon \quad (9)$$

Où $\bar{\alpha} = \alpha d/L$ est le paramètre non-linéaire hystérétique moyen, proportionnel à la longueur d'un hystéron (ou d'un groupe d'hystérons) (de longueur d) le long du barreau (de longueur L) ; x_d correspond à la position centrale de l'hystéron (ou d'un groupe d'hystérons) ; $\Delta \varepsilon$ est le niveau de déformation maximale ; et Q est le facteur de qualité. Le nombre d'onde $k_{res} = \pi/L * (2m-1)/2$ (condition encastrée-libre) or $k_{res} = \pi/L * m$ (libre-libre), m étant le numéro du mode de résonance ($m > 0$).

A partir de cette expression, on remarque que le paramètre non-linéaire α qui correspond à la non-linéarité intrinsèque du matériau, dépend de paramètres spatiaux (la position x_d et la longueur relative d/L de la source hystérétique (un hystéron ou un groupe d'hystérons) et de paramètres modaux (Q and k_{res}). Remarquons tout de suite que le rôle de Q est négligeable lorsque le matériau n'est pas très atténuant ($Q < 10$), ce qui est souvent le cas. Prenons quelques exemples pour illustrer la variation du décalage en fréquence en fonction des paramètres spatiaux et modaux.

Pour un matériau dont la distribution des hystérons est homogène sur toute la longueur du barreau ($\bar{\alpha} = \alpha$), la valeur du paramètre non-linéaire α ne dépend que du facteur $|\sin^3(k_{res}x_d)|$. La valeur moyenne de ce facteur est comprise entre 0.42 et 0.55 selon les conditions aux limites et le mode. Ainsi pour un échantillon ayant une distribution homogène des sources non-linéaires, la valeur de la non-linéarité non classique intrinsèque α peut varier jusqu'à 19%, seulement à cause des conditions aux limites et du choix du mode excité.

Maintenant, si nous ne regardons plus la valeur moyenne du facteur $|\sin^3(k_{res}x_d)|$ mais sa valeur en chaque point du barreau, le coefficient de proportionnalité est clairement différent suivant le mode et les conditions aux limites (Fig.3). Ainsi, si le défaut se trouve à

coté de la source piézo-électrique ($x_d/L=1$), le défaut ne sera pas excité en condition libre-libre ($|\sin^3(k_{res}x_d)| \approx 0$ tandis qu'il sera excité de manière optimale en condition encastré-libre.

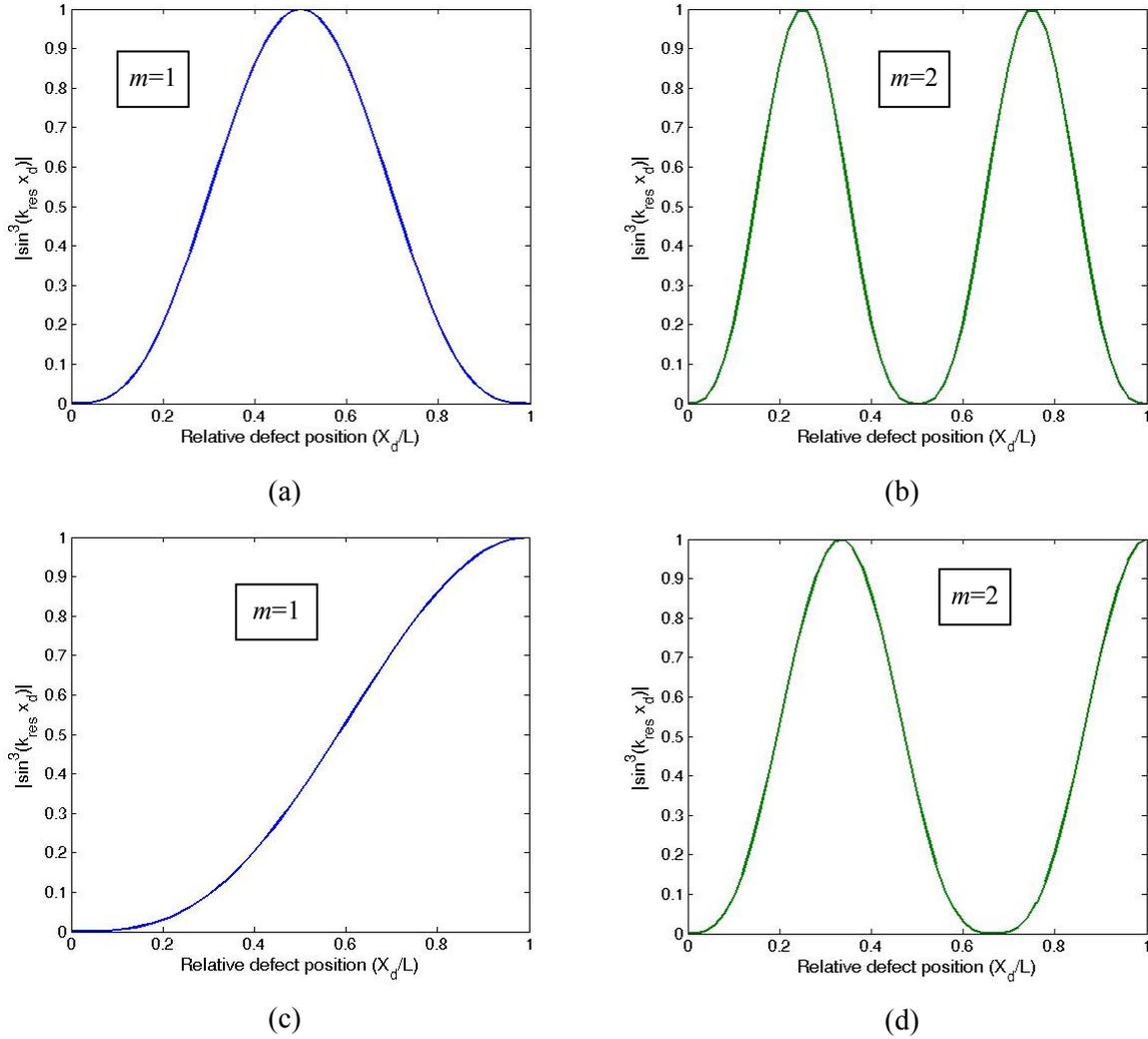


Figure 3 : Valeur du facteur de proportionnalité $|\sin^3(k_{res}x_d)|$ normalisé à 1 en fonction de la position x_d du défaut (source non-linéaire non classique), des conditions au limites libre-libre (a, b), ou encastrée-libre (c, d) et du mode de vibration ($m=1$ (a, c) ou $m=2$ (b, d)).

Avec l'exemple précédent, il est facile de comprendre qu'en choisissant judicieusement les champs de déformation (associés aux modes et aux conditions aux limites), il devient possible de remonter à la localisation et à la largeur d'une microfissure à l'aide d'un problème inverse (Van den Abeele, 2007). C'est approche multimodale a été testée expérimentalement avec succès sur un barreau de ciment ayant une microfissure localisée à l'une de ses extrémités (Liu *et al.*, 2010). Une autre étude basée sur la modulation d'amplitude (Donskoy *et al.*, 2001), montre que l'amplitude relative des raies latérales dépend du mode choisi pour servir d'onde pompe basse fréquence. Le mode exerçant le moins de contrainte sur la fissure (i.e maximum de déplacement), engendre une raie latérale de plus

faible amplitude. Des simulations réalisées à partir d'un modèle *PM-Space* amélioré confirment que la non-linéarité globale moyenne dépend du mode, de la position et de la longueur de la source non-linéaire (Gliozzi *et al.*, 2006).

En pratique, lors de l'endommagement progressif d'un matériau, la variation du paramètre non-linéaire α peut avoir deux causes : 1) une augmentation spatiale de la densité de sources (hystérons) ou de leur longueur comme l'apparition de nouvelles microfissures ou l'augmentation de la longueur des microfissures déjà présentes ; 2) une augmentation locale de l'intensité de la non-linéarité de l'hystéron, comme l'ouverture d'une microfissure déjà présente mais initialement fermée. Grâce à l'approche multimodale, il devrait être possible de distinguer la source de l'augmentation de la non-linéarité. Ainsi, dans le cas d'un endommagement localisé, la variation du paramètre α doit être identique pour tous les modes testés. Le coefficient de proportionnalité reste le même pour chaque mode, seule la valeur de la non-linéarité intrinsèque α change. Au contraire, si au cours de l'endommagement de nouvelles sources hystérétiques apparaissent, le coefficient de proportionnalité doit varier différemment suivant les modes testés. L'évolution multimodale de la non-linéarité devrait donc permettre de distinguer l'origine locale ou diffuse (multi-sites) de l'endommagement.

3.1.5 Imagerie 2-D/3-D et focalisation par retournement temporel

La visualisation 2-D ou 3-D des sources non-linéaires est l'un des grands défis actuels de la communauté non-linéaire développant des techniques d'inspection des défauts pour le CND. L'approche classique consiste à scanner en 2-D la surface à analyser à l'aide d'un dispositif pulse-écho ou en transmission (Zheng *et al.*, 1999) et d'extraire les contributions non-linéaires dans le signal de réception (impulsion, signal continu ou train d'impulsion). Si l'onde acoustique rencontre une source de non-linéarité sur son trajet, elle s'enrichit d'harmoniques. Cette technique a été adaptée par exemple, pour détecter les délaminations dans les composites (Krohn *et al.*, 2002), tester l'intégrité de microsoudures ou la présence de microfissures dans les métaux (Zheng *et al.*, 1999; Kawashima *et al.*, 2006; Guyer and Johnson, 2009; Jhang, 2009). Certains auteurs ont mis au point des techniques excitant préférentiellement les sous-harmoniques car cela permet de détecter de manière sélective les microfissures fermées localisées en profondeur (Ohara *et al.*, 2010). Une variante de l'imagerie harmonique est l'imagerie de modulation. Elle reprend le principe de la modulation d'ondes acoustiques lorsque deux ondes traversent simultanément un micro-défaut (voir le chapitre mélange de fréquence) (Kazakov *et al.*, 2002).

Enfin l'utilisation du principe du retournement temporel (Fink, 1993; 1997) en acoustique non-linéaire, qui permet de focaliser l'énergie temporellement et spatialement, a été activement étudiée ces dix dernières années. Grâce au principe d'invariance temporelle et à la nécessité d'avoir un système linéaire, la technique s'avère particulièrement performante pour détecter les sources de non-linéarité. Les techniques combinant retournement temporel et acoustique non linéaire sont généralement regroupées sous le terme de TRNEWS (« *Time Reversal-Nonlinear Elastic Wave Spectroscopy* ») (Guyer and Johnson, 2009). On peut les séparer en deux grandes catégories (Goursolle *et al.*, 2008) suivant qu'elles permettent soit d'exciter localement les micro-défauts (microfissures, délaminations...) à l'aide d'un signal de forte intensité obtenu grâce à la focalisation temporelle et spatiale du retournement temporelle, pour ensuite analyser les composantes non-linéaires dans les signaux reçus (Ulrich *et al.*, 2006; Rivière *et al.*, 2012) , soit de localiser les micro-défauts en réinjectant seulement le contenu non-linéaire des signaux récupérés lors de la phase d'apprentissage (Ulrich *et al.*, 2007a). La localisation de l'endommagement peut aussi se faire en analysant la rupture de la réciprocité spatiale causée par la présence de sources non-linéaires sur le trajet de l'onde (Scalerandi *et al.*, 2012). Pour simplifier les dispositifs expérimentaux multi-voies très coûteux et complexes, et aussi pour augmenter le rapport signal sur bruit des dispositifs mono-voies, Van Den Abeele et Bou Matar ont introduit un nouveau transducteur à cavité chaotique très prometteur (Bou Matar *et al.*, 2009; Van Damme *et al.*, 2011). Les techniques TRNEWS ont été utilisées dans des domaines aussi variés que le CND (Ulrich *et al.*, 2006; Scalerandi *et al.*, 2008), la localisation de mine anti-personnel (Sutin *et al.*, 2009), la caractérisation des roches (Sutin *et al.*, 2004), l'imagerie non-linéaire de la dent (Dos Santos and Prevorovsky, 2011) ou la caractérisation d'un système mimant l'ostéo-intégration d'implant dentaire (Rivière *et al.*, 2012).

L'une des principales limitations dans la mise en œuvres de ces techniques d'imagerie vient la présence indispensable d'un couplant entre les transducteurs et le matériau, qu'ils soient en contact ou immergés dans un fluide (Zheng *et al.*, 1999). De nouveaux transducteurs ont fait leur apparition. Ils permettent de s'affranchir du couplant. Ce sont les transducteurs EMAT (« *ElectroMagnetic Acoustic Transducer* ») qui permettent d'exciter les matériaux ferromagnétiques (Murayama and Ayaka, 2007) ainsi que les transducteurs à couplage aérien (Solodov *et al.*, 2006b). D'autres enfin utilisent des vibromètres laser sensibles aux vibrations créés par le passage d'une onde acoustique (Solodov *et al.*, 2004).

3.3 Evaluation de l'accumulation du micro-endommagement par acoustique non-linéaire

Historiquement, l'application des techniques d'acoustique non-linéaire au CND a commencé par l'étude des dislocations dans les métaux avec la caractérisation des frictions internes via des phénomènes non-classiques dans des matériaux tels que le zinc (Read, 1940; Nowick, 1950; Nazarov and Kolpakov, 2000), le plomb (Mason, 1956; Nazarov, 1999), le cuivre (Nazarov, 1991) ou des alliages de Cu-Ni (Kustov *et al.*, 1999). Typiquement, les scientifiques mesuraient la dépendance en amplitude de l'atténuation (ADIF) et parfois de la variation du module (ADMD) avant et après traitement thermique (e.g recuit, qui augmente la taille des grains et réduit le nombre de dislocations). En parallèle, d'autres scientifiques ont cherché des relations opérationnelles entre l'amplitude des harmoniques (principalement l'harmonique deux) et les caractéristiques des dislocations sans se préoccuper des effets non-linéaire dissipatif ni des phénomènes hystérétiques élastiques (Breazeale and Thompson, 1963; Hikata *et al.*, 1965; Yost and Cantrell, 1992; Cantrell and Yost, 1997)). Cette approche est directement inspirée de la théorie de l'acoustique non-linéaire classique avec comme principales sources non-linéaires, l'anharmonicité de la matrice (Landau and Lifshitz, 1986).

Une autre branche de l'acoustique non-linéaire dédiée au CND a fait son apparition à la fin des années 1970. Elle s'attache à la détection et au suivi des microfissures dans les matériaux. Elle a débuté avec les célèbres travaux de Buck et Moris (Buck and Morris, 1978; Morris *et al.*, 1979) sur les non-linéarités de contact [en anglais « *Contact Acoustics Nonlinearity* » (CAN) (Solodov *et al.*, 2006a)] dans les métaux. Ils montrèrent que l'amplitude de la seconde harmonique normalisée par l'amplitude de la fondamentale au carré, est reliée à qualité du contact entre deux blocs d'aluminium (Buck and Morris, 1978) ainsi qu'à la fatigue d'une pièce d'aluminium (Morris *et al.*, 1979). Il faut attendre les années 2000 pour que de nouvelles techniques et une meilleure compréhension des mécanismes voient le jour.

Ces dix dernières années, le contrôle non-destructif basé sur les méthodes d'acoustiques non-linéaires a vu l'émergence d'un nombre important de techniques combinant tous les effets de l'acoustique non-linéaire [génération d'harmonique (Cantrell and Yost, 2001; Kim *et al.*, 2009), mélange de fréquences (Zagrai *et al.*, 2008), résonance non-linéaire (Van den Abeele *et al.*, 2009a), acousto-élasticité (Nagy, 1998; Moreschi *et al.*, 2011), dynamique lente (Bentahar and El Guerjouna, 2009; Kodjo *et al.*, 2011)...] avec tous

les types d'excitation possibles [onde continues (Van den Abeele *et al.*, 2001a), impulsion (Kim *et al.*, 2009), train d'onde (Kim *et al.*, 2006), impact (Donskoy *et al.*, 2001; Chen *et al.*, 2008), retournement temporel (Dos Santos and Prevorsevsky, 2011; Rivière *et al.*, 2012)...]. Dans la plupart des cas, les études se sont limitées à des tests de faisabilité en comparant le taux de non-linéarité présent dans un échantillon sain (i.e intact) avec celui d'un échantillon endommagé. Parfois, la variation du paramètre non-linéaire (classique (β , δ) ou non classique α) est comparée à celui du paramètre linéaire (vitesse, module élastique, atténuation...). Cette comparaison est généralement flatteuse car elle donne l'avantage au paramètre non-linéaire dont la variation est souvent de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle du paramètre linéaire (Van den Abeele *et al.*, 2001a). Par contre, elle ne prend pas en compte la variabilité de la mesure non-linéaire (test de variabilité intra-échantillon) qui est bien plus grande que pour la mesure linéaire (il n'est pas rare d'avoir une variabilité de l'ordre de 20% pour la mesure non-linéaire contre 2% pour le paramètre linéaire (voir chapitre 4). Cette variabilité peut provenir du décollement des sources, des non-linéarités de contact parasites ou des facteurs environnementaux (température, humidité...) (voir chapitre 4). De plus, très peu d'études ont été réalisées sur un nombre d'échantillons statistiquement représentatif (test de variabilité inter-échantillon) (voir chapitre 4). Partant de ce constat, nous avons voulu nous focaliser dans ce paragraphe sur les études qui établissent des relations opérationnelles entre la non-linéarité mesurée et les propriétés de l'endommagement. En particulier :

- Existe-il des liens opérationnels (qualitatifs ou quantitatifs) entre les caractéristiques de l'endommagement (densité de microfissures ou de dislocations, longueur de la microfissure, durée de vie, orientation, localisation...) et le niveau de non-linéarité mesuré ?
- Existe-il des effets de seuils d'activation ou de saturation de la non-linéarité acoustique suivant le degré d'endommagement ? Est-ce que les seuils d'activation ou de saturation des paramètres non-linéaires sont différents des seuils des paramètres linéaires ?
- Quelle est la sensibilité des différents types de non-linéarité (élastique (friction ou clappement) et dissipative (friction)) liées à l'endommagement ?

Nous étudierons principalement un type d'endommagement, les microfissures. Les microfissures sont le résultat du clivage de la matière en deux parties. Les bords des deux surfaces sont plus ou moins liés, rugueux ou espacés. Lorsque les deux bords (i.e lèvres) de la fissure sont en contact, sans espace interstitiel, on parle alors de fissure fermée. Les

microfissures ont une longueur maximale de quelques centaines de microns et sont difficilement visible à l'œil nu (Zagrai *et al.*, 2008). On parle de fissure ou macrofissure, lorsque la fissure devient visible, c'est-à-dire qu'elle fait plusieurs millimètres de long et qu'elle est ouverte, d'épaisseur typiquement de quelques microns ou plus.

L'initiation puis la propagation des microfissures dépendent du matériau et de ce qu'il a subi. Ainsi, l'endommagement peut provenir de réactions chimiques (réaction alkali-silica (ASR) dans le béton (Payan *et al.*, 2007)), de traitements thermiques (choc thermique sur des composites (Van den Abeele *et al.*, 2009b), recuit du zinc (Nazarov and Kolpakov, 2000), dégradation thermique d'acier (Kim *et al.*, 2009)) ou de sollicitations mécaniques (fatigue cyclique d'aluminium (Zagrai *et al.*, 2008), impact sur un composite (Aymerich and Staszewski, 2010), test de ténacité sur des éprouvettes d'alliage d'aluminium (Straka *et al.*, 2008)).

Dans la Table I ci-dessous, nous avons regroupé de manière aussi exhaustive que possible les études d'acoustique non-linéaire dans lesquelles les auteurs ont mesuré la progression d'un ou plusieurs paramètres non-linéaires en fonction d'un autre paramètre, qu'il provienne de l'acoustique linéaire (fréquence, vitesse ou facteur de qualité) ou associé à une caractéristique de l'endommagement (durée de vie, nombre de cycles de fatigue, longueur de la fissure ou densité de fissures).

Matériau	Technique NL	D	Param NL	Param L	Param D	Observations	Ref
Composite	NRUS + SD	Méca	α_f et t_{SD}	AE		α_f et t_{SD} vs étape endommagement t_{SD} vs AE	(Bentahar and El Guerjouma, 2009)
Composite	NRUS + NWMS	Impact	α_f		Cr.A	α_f vs Cr.A	(Meo <i>et al.</i> , 2008)
Composite	NRUS	Therm	α_f et α_Q	E, Q	Cr.Dn	α_f vs Cr.Dn	(Van den Abeele <i>et al.</i> , 2009b)
Composite	NRUS	Chimie+ Méca	α_f	E, T_{max}	durée exposition	α_f vs L et méca	(Van den Abeele <i>et al.</i> , 2001b)
Composite	NWMS	Impact	δ et β combinés		énergie impact et dissipée, Cr.A	NL vs paramètres endommagement	(Aymerich and Staszewski, 2010)
Tuile	NRUS + NWMS	Méca	α_f et α_Q δ et β	v, Q	DV Cr.Dn	NL et L vs DV α_f vs α_Q NWMS vs NRUS NL vs Cr.Dn 60 tuiles	(Van den Abeele <i>et al.</i> , 2001a)
Béton	NRUS	ASR	α_f	E	%expansion	α_f vs durée ASR error bar	(Chen <i>et al.</i> , 2010)
Béton	NRUS	ASR	α_f	f	%expansion	α_f vs durée ASR error bar	(Lesnicki <i>et al.</i> , 2011)

Matériau	Technique NL	D	Param NL	Param L	Param D	Observations	Ref
Béton	NRUS	ASR	α_f (longi et shear)	ν		α_f vs durée ASR α_f longi vs α_f shear	(Payan <i>et al.</i> , 2007)
Béton	NRUS	Méca	α_f et α_Q	E, Q	DV	NL et L vs DV	(Van den Abeele and De Visscher, 2000)
Béton	SSM	Méca	SSM	Q, ν	DV	L et NL vs DV	(Antonaci <i>et al.</i> , 2010)
Béton	HARMO	Curing	δ et β	ν	T°C et durée de curing	NL et L vs durée de curing	(Lacouture <i>et al.</i> , 2003)
Béton	HARMO	Curing	β (longi et shear)	E, ν, μ	T°C et durée de curing Emission Acoustic	NL et L vs durée de curing, hydratation, emission acoustic	(Van den Abeele <i>et al.</i> , 2009a)
Béton	NWMS	ASR	Aire lobes latéraux		%expansion	Aire lobes latéraux vs %expansion	(Chen <i>et al.</i> , 2008)
Béton	NWMS	Méca	Aire lobes latéraux	f	Cr.Le	f et NL vs Cr.Le (1 fissure)	(Zardan <i>et al.</i> , 2010)
Métal	NRUS	Méca	α_f et α_Q	f, Q	nbre cycles	NL et L vs nb cycles	(Van den Abeele <i>et al.</i> , 2002)
Métal	HARMO	Méca	β		nbre cycles	β vs nbre cycles error bar	(Cantrell and Yost, 2001)
Métal	HARMO	Méca	β		DV	β vs DV théorie intéressante	(Cantrell, 2006)
Métal	HARMO	Méca	β		DV	β vs DV endommagement localisé et diffus	(Kim <i>et al.</i> , 2006)
Métal	HARMO	Méca	β		DV	β vs DV	(Frouin <i>et al.</i> , 1999)
Métal	HARMO	Méca	β		nbre cycles	β vs nbre cycles β vs μ scopie	(Sagar <i>et al.</i> , 2010)
Métal	NWMS	Méca	β sur bande passante		nbre cycles et 1/E	β vs 1/E β vs nbre cycle β vs μ scopie	(Zagrai <i>et al.</i> , 2008)
Métal	NWMS (modulation méca)	Méca	β		nbre cycles et chargement	β vs nbre cycle et chargement. Ouverture et de la fissure	(Kim <i>et al.</i> , 2004)
Métal	NWMS	Méca	β sur bande passante		Cr.le, Cr.A	β vs Cr.le et Cr.A (1 fissure) Modèle Cr.Le vs β	(Duffour <i>et al.</i> , 2006)
Métal	NWMS	Méca	β		Cr.le	β vs Cr.le (1 fissure) Modèle Cr.Le vs β	(Donskoy <i>et al.</i> , 2001)
Métal	NWMS (bispectral)	Méca	δ et β combinés		Cr.le	δ et β combinés vs Cr.le (1 fissure)	(Courtney <i>et al.</i> , 2008)
Métal	NWMS	Méca	δ et β		Cr.le et nbre cycles	δ et β vs Cr.le (1 fissure)	(Straka <i>et al.</i> , 2008)

Légende : NRUS (Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy), NWMS (Nonlinear Wave Modulation Spectroscopy), HARMO (génération d'harmoniques), SSM (Scale Subtractive Method), NL (Non linéaire), L (linéaire), D (endommagement), ASR (alkali-silica reaction), ann (recuit), SD (dynamique lente), t_{SD} (Temps de relaxation de la dynamique lente), AE (Emission acoustique), ν (vitesse du son), μ (coefficient de Poisson), f (fréquence de résonance), Q (atténuation), E (module élastique), T_{max} (contrainte à la rupture), Cr.le (longueur de la fissure), Cr.Dn (densité de fissures), Cr.A (surface des fissures), % DV (% de durée de vie = nb cycles / nb cycles à la rupture, ou % durée de vie = $1 - E/E_0$).

Table 1 : Récapitulatif des études où au moins un paramètre non-linéaire est mesuré au cours de la progression d'un endommagement (mécanique, chimique, thermique).

3.1.6 Quelle(s) non-linéarité(s) mesurée(s) par la génération d'harmoniques ou le NWMS ?

On remarque que la majorité des études se basent sur la génération d'harmoniques et le mélange de fréquence (NWMS) et que les auteurs se focalisent en particulier sur la seconde harmonique ou la première raie latérale, c'est-à-dire sur le paramètre β . Ce paramètre β est issu de la théorie non-linéaire classique (voir paragraphe 3.1.1). Il correspond au coefficient de proportionnalité entre l'amplitude du pic de la seconde harmonique (ou de la première raie latérale) et le carré de l'amplitude du fondamental (ou le produit de l'amplitude des deux ondes propagées) (Voir les Eqs. 3.4 et 3.7). Il semblerait que cette relation de proportionnalité reste inchangée pour les matériaux progressivement endommagés, en particulier pour les métaux, généralement considérés comme étant purement non-linéaires classiques [alliage d'aluminium (Straka *et al.*, 2008), aluminium (Frouin *et al.*, 1999), alliage de nickel (Kim *et al.*, 2006), acier (Donskoy *et al.*, 2001), acier inox (Cantrell, 2006)]. De manière surprenante, nous retrouvons cette relation de proportionnalité pour un matériau typiquement non-linéaire hystérétique comme le béton, pour lequel la dépendance en amplitude suit une loi de puissance d'exposant compris entre 1 et 1.5 (Van den Abeele *et al.*, 2009a)(Lacouture (Lacouture *et al.*, 2003). Parmi ces auteurs, certains ont aussi mesuré la relation entre l'harmonique trois (ou la deuxième raie latérale) et l'amplitude du fondamental. Si le matériau est plutôt élastique non-classique, la relation devrait être quadratique (extraction de α , voir Eqs. 3.6 et 3.8) tandis que si le matériau se comporte comme un matériau non-linéaire classique, la relation devrait être cubique (extraction de δ , voir Eqs 3.5). En pratique, il est difficile de départager les deux types de non-linéarité. Ainsi, Lacouture (Lacouture *et al.*, 2003) et Straka (Straka *et al.*, 2008) trouvent des relations dont la dépendance en amplitude entre l'harmonique trois (ou la deuxième raie latérale) et l'amplitude fondamentale, suit une loi de puissance d'exposant compris entre 2 (quadratique) et 3 (cubique) dans le béton et le métal respectivement. Straka invoque les mécanismes non-linéaires non classiques décrit, entre autre, par Zaitsev (Zaitsev *et al.*, 2006) (voir paragraphe 2.3.3 et 3.1.3) pour expliquer la déviation du modèle élastique hystérétique. Straka (Straka *et al.*, 2008) et Van Den Abeele (Van den Abeele *et al.*, 2001a) trouvent que la troisième harmonique augmente plus rapidement que la seconde harmonique avec l'endommagement. Quant à Lacouture (Lacouture *et al.*, 2003), il observe une variation non corrélée des deux harmoniques en fonction du durcissement du béton. Ces observations confirment que les deux harmoniques ne sont pas également sensibles à l'endommagement et que l'harmonique trois est très

certainement associée à un mécanisme élastique (surement hystérétique) différent de l'harmonique deux. Cette hypothèse est confirmée par la très bonne corrélation entre le paramètre purement hystérétique α_f et l'énergie contenue dans les raies latérales impaires (voir Fig.10 de (Van den Abeele *et al.*, 2001a)).

3.1.7 Quelle(s) non-linéarité(s) mesurée(s) par le NRUS ?

Les études réalisées à partir de la mise en résonance de l'échantillon (technique NRUS) montrent clairement que le décalage en fréquence, traduisant la réduction du module élastique, est directement proportionnel à la déformation (i.e excitation) [Tuile (Van den Abeele *et al.*, 2001a), composite (Van den Abeele *et al.*, 2001b; Van den Abeele *et al.*, 2009b), béton (Payan *et al.*, 2007; Van den Abeele *et al.*, 2009a; Chen *et al.*, 2010; Lesnicki *et al.*, 2011) et métal (Van den Abeele *et al.*, 2002). Nous sommes donc en présence d'un comportement non-classique caractérisé par les paramètres non-linéaires élastique α_f et dissipatif α_Q . Lorsque l'endommagement augmente, le relation de proportionnalité entre la déformation et le décalage en fréquence reste, même si la relation dévie parfois légèrement d'une proportionnalité stricte (Van den Abeele and De Visscher, 2000). La valeur intrinsèque d' α_f et d' α_Q est rarement mesurée. A titre d'exemple, dans les composites, α_f varie entre 1 et 8 pour un échantillon intact suivant la direction des fibres et entre 10 et 40 pour un échantillon sévèrement endommagé (par choc thermique (Van den Abeele *et al.*, 2009b), ou traitement chimique (Van den Abeele *et al.*, 2001b). Lorsque les deux paramètres sont évalués au cours de l'endommagement progressif, les auteurs observent une très bonne corrélation entre les deux paramètres (tuile (Van den Abeele *et al.*, 2001a), métal (Van den Abeele *et al.*, 2002), béton (Van den Abeele and De Visscher, 2000). Cette relation est définie par un paramètre, le rapport de Read, normalement indépendant de la déformation et caractéristique du comportement hystérétique de l'élasticité non-linéaire (voir paragraphe 2.2.2). Notons enfin l'existence de quelques études (Bentahar and El Guerjouma, 2009; Kodjo *et al.*, 2011) ayant testé la sensibilité du phénomène de dynamique lente souvent associé à la non-linéarité élastique hystérétique. La durée de relaxation rapide (voir paragraphe 2.3.3) semble être corrélée à une caractéristique de l'endommagement : l'énergie cumulée relâchée pendant la création et la propagation de l'endommagement (mesurée par émission acoustique) (Bentahar and El Guerjouma, 2009).

3.1.8 Variation de β et α_f

Il existe donc clairement (au moins) deux types de non-linéarité (classique et non-classique) sensible à l'endommagement. Laquelle est plus sensible à l'endommagement ? Seules deux études (Van den Abeele *et al.*, 2001a; Straka *et al.*, 2008) ont comparé les deux types de non-linéarités au cours d'un endommagement progressif. Elles montrent toutes les deux que la non-linéarité non-classique est plus sensible que la non-linéarité classique au début du processus d'endommagement. Dans le cas de l'aluminium (Straka *et al.*, 2008), α_f atteint un plateau alors que β semble pouvoir continuer à progresser avec l'endommagement. Ce n'est pas le cas pour les tuiles (Van den Abeele *et al.*, 2001a) dont la non-linéarité α_f ne cesse de croître et de manière exponentielle, jusqu'à la rupture.

De manière générale, la progression du paramètre classique β est plus faible que celle du paramètre non-classique α_f ou de la combinaison des deux (énergie des raies latérales). Ainsi, dans les métaux, β progresse de 30% (Kim *et al.*, 2006) à 180% (Frouin *et al.*, 1999) suivant le matériau, les conditions de l'endommagement mécanique et l'arrêt de l'endommagement. Par exemple Kim (Kim *et al.*, 2004) mesure une progression de 100% de β lorsque l'échantillon d'alliage de nickel a subi une contrainte supérieure à sa limite élastique alors que la progression est limitée à 30% juste avant la rupture lors d'un test de fatigue ne dépassant pas la limite élastique. Une étude récente (Sagar *et al.*, 2010) sur des échantillons d'acier perlitique a montré une augmentation de +1000% (x12) de la valeur de β . Au cours de cette étude, la progression de β n'est pas monotone et passe par un maximum après un certain nombre de cycles d'endommagement. Elle serait liée à d'importants changements de la structure microscopique de l'acier (dislocation de cisaillement et fracture dans la phase cémentite).

La variation du paramètre non-linéaire hystérétique α_f dépasse facilement +1000% (x10). Ainsi, les auteurs ont observé des augmentations de x2.3 dans le béton (Payan *et al.*, 2007), x10 dans le béton au cours d'une réaction alkali-silica (Chen *et al.*, 2010), x10 dans un composite ayant subi des chocs thermiques (Van den Abeele *et al.*, 2009b), x20 dans un échantillon de titane fatigué jusqu'avant la rupture (Van den Abeele *et al.*, 2002), jusque x1000 dans des tuiles avant fracture (Van den Abeele *et al.*, 2001a) ou le béton à 30% de durée de vie (Van den Abeele and De Visscher, 2000). Les études combinant toutes les non-linéarités montrent aussi une augmentation importante de la non-linéarité, de x2 à x5 dans un échantillon d'acier avant fracture (Donskoy *et al.*, 2001; Duffour *et al.*, 2006; Zagrai *et al.*,

2008), de $\times 6$ lors de la propagation d'une fissure dans une éprouvette de béton (Zardan *et al.*, 2010), jusque $\times 100$ dans des échantillons de bétons fatigués jusqu'à la rupture (Antonaci *et al.*, 2010). La variation de la non-linéarité hystérétique est donc largement supérieure à celle de la non-linéarité classique. Il faut cependant noter que les matériaux sont différents et que le type d'endommagement mesuré n'est certainement pas le même.

3.1.9 Seuil, saturation, et variabilité de β et α_f

Le taux de variation des paramètres non-linéaires (hystérétique α_f et classique β) est important mais cette variation doit être accompagnée de précisions supplémentaires : seuil de déclenchement, saturation, variabilité. Sans ces précisions, il est difficile de pouvoir préjuger de la supériorité des mesures non-linéaire sur les mesures linéaires (vitesse, module élastique, fréquence de résonance, atténuation). Or peu d'études ont systématiquement mesurée la variabilité de la mesure non-linéaire. Lesnicki (Lesnicki *et al.*, 2011) a mesuré une variabilité de la mesure non-linéaire de l'ordre de 10% après recollage de la pastille piézo-électrique. Duffour (Duffour *et al.*, 2006) pointe le problème des non-linéarités de contact issu du dispositif expérimental, comme par exemple les supports (Duffour *et al.*, 2006) ou le maintien de l'échantillon (Aymerich and Staszewski, 2010). De plus la plupart des études ne sont réalisées que sur un échantillon progressivement endommagé (Frouin *et al.*, 1999; Van den Abeele and De Visscher, 2000; Kim *et al.*, 2004; Zagrai *et al.*, 2008), ou quelques échantillons a différents stades d'endommagement (Cantrell and Yost, 2001; Courtney *et al.*, 2008; Straka *et al.*, 2008; Sagar *et al.*, 2010; Zardan *et al.*, 2010). Seules quelques études ont produit des données issues d'un nombre important d'échantillons (par exemple 60 tuiles (Van den Abeele *et al.*, 2001a) ou 21 échantillons de composite (Van den Abeele *et al.*, 2009b)), ou bien ont répété la mesure un grand nombre de fois permettant d'avoir des barres d'erreurs fiable (mesure répétée 9 fois + conditions expérimentales très contrôlées (Antonaci *et al.*, 2010)). Les résultats sont donc à prendre avec précaution, surtout lorsque nous cherchons à établir la supériorité des paramètres non-linéaires sur les mesures linéaires ou bien des relations opérationnelles avec une caractéristique de l'endommagement.

3.1.10 Comparaison entre les paramètres linéaires et non-linéaires

Pour prouver l'attrait des techniques non-linéaires, la comparaison entre les paramètres linéaires et non linéaires devrait toujours être réalisée ce qui est loin d'être systématique. Lorsqu'elle est réalisée, elle est presque toujours à l'avantage des paramètres non linéaires

[sauf dans le cas de la réaction alkali-granulat (ASR) du béton où les deux types de paramètres ne sont pas corrélés. En effet, les paramètres linéaires et non-linéaires sont associés à différents changements physico-chimiques du béton au cours de l'ASR (Lacouture *et al.*, 2003; Van den Abeele *et al.*, 2009a; Chen *et al.*, 2010; Lesnicki *et al.*, 2011)]. Ainsi le module élastique (ou la fréquence de résonance) et l'atténuation varient généralement de moins d'un ordre de grandeur quand le paramètre non-linéaire varie entre un et trois ordres de grandeur (métal (Cantrell, 2006), tuile (Van den Abeele *et al.*, 2001a), béton (Van den Abeele and De Visscher, 2000; Payan *et al.*, 2007), composite (Van den Abeele *et al.*, 2009b)). Malheureusement dans ces études, la variabilité de la mesure non-linéaire (qui par expérience est de l'ordre de 10 à 20% (voir chapitre 4)) n'est jamais comparée à la variabilité de la mesure linéaire (qui par expérience est de l'ordre de 1 à 2% (voir chapitre 4)). En comparant la variation des paramètres par rapport à leur variabilité respective supposée, nous pouvons tout de même penser que les paramètres non-linéaires sont plus sensibles à un endommagement avancé. Or l'intérêt des techniques de CND est de prédire l'endommagement précoce. Dans ce cas, une étude systématique de la variabilité (inter et intra-échantillons) des paramètres linéaires et non-linéaires sur une progression limitée de l'endommagement (par exemple sur les dix premiers % de durée de vie d'une structure) doit encore être réalisée.

3.1.11 Paramètres non-linéaires vs endommagement non-localisé

Enfin, pour clore cette revue bibliographique, citons les quelques études ayant tentées de trouver un lien opérationnel entre les paramètres non-linéaire (β ou α_f) et une caractéristique de l'endommagement. Ce lien est essentiel pour disséminer le CND par acoustique non-linéaire, car les ingénieurs ont besoin de traduire la mesure en une longueur, une densité, une surface de microfissure ou une durée de vie (DV). La durée de vie est le paramètre le plus couramment associé à la variation du paramètre non-linéaire. Il peut être défini par rapport à la variation du module élastique ($DV = 1 - E/E_0$, avec E le module élastique) ou par rapport au nombre de cycles avant la rupture ($DV = N/N_{rupture}$, avec N le nombre de cycles). La durée de vie donne accès indirectement à la quantité d'endommagement non localisé (diffus). Dans les métaux, comme les alliages de titane (Frouin *et al.*, 1999) ou les alliages de nickel (Kim *et al.*, 2006), les auteurs observent une variation presque linéaire de β au début de l'endommagement (DV variant entre 0 et 40%) avant de saturer vers 80%. Zagrai (Zagrai *et al.*, 2008) constate quant à lui une très bonne

corrélation entre la variation du module élastique mécanique (0-20% pour l'aluminium et 0-10% pour l'acier) et la non-linéarité (0-50% pour l'aluminium et 0-25% pour l'acier). La corrélation est linéaire ($n=1$) pour l'aluminium et en loi de puissance plus élevée pour l'acier ($n>1$). Dans cette étude, le paramètre non-linéaire mesuré combine les effets classiques et non-classiques. Il faut toutefois noter que toutes ces études ont été réalisées sur un seul échantillon. Enfin dans l'acier, Cantrell (Cantrell, 2006) constate une légère augmentation de type logarithmique entre $DV = 0-10\%$ avec une grande dispersion des valeurs, puis un saut juste avant la fracture des échantillons ($DV = 100\%$). Si le faible nombre d'échantillons nous incite à la prudence dans l'extrapolation des résultats, il semblerait que dans les métaux, la non-linéarité augmente au cours de l'initiation de l'endommagement avant de rapidement saturer. La sensibilité de la mesure non-linéaire serait donc limitée à la première phase de l'endommagement (création de dislocations).

Les études menées dans les matériaux de construction donnent des résultats différents et généralement plus fiables car obtenus sur un grand nombre d'échantillons. Ainsi dans le béton, il semble que les paramètres non-linéaires (non classique et classique) augmentent en 3 phases : Phase 1 : augmentation rapide de la non-linéarité jusque $DV = 10-20\%$. Phase 2 : stabilisation de la non-linéarité entre $DV = 20\%-80\%$. Phase 3 : augmentation rapide de la non-linéarité juste avant la rupture de l'échantillon de béton (Van den Abeele and De Visscher, 2000; Antonaci *et al.*, 2010). La première phase serait associée à la formation rapide de microfissures qui permettraient de dissiper l'énergie. La troisième phase serait liée à la création d'une ou plusieurs macrofissures qui mèneraient à la fracture. Dans les tuiles, Van Den Abeele (Van den Abeele *et al.*, 2001a) observe une augmentation exponentielle de la non-linéarité quand la DV varie de 0 à 80%. Il n'y a donc pas de saturation de la non-linéarité et la sensibilité du paramètre α_f augmente avec l'endommagement de la tuile. Cette dernière étude tente d'évaluer la sensibilité du paramètre non-linéaire à la densité de fissures (Cr.Dn). Ce sont des microfissures, difficilement visibles à l'œil nu. La corrélation entre α_f et la (Cr.Dn) est médiocre car pour la même valeur de Cr.Dn, des niveaux d' α_f très différents sont mesurés. Il s'avèrera que l'évaluation de Cr.Dn n'était pas très précise. Van Den Abeele pointe là un des problèmes majeurs pour établir une relation quantitative, l'évaluation précise et juste de l'endommagement (densité, surface ou longueur). Une seconde tentative sur des composites s'approche d'une relation quantitative en constatant un lien qualitatif entre la Cr.Dn et α_f (Van den Abeele *et al.*, 2009b).

3.1.12 Paramètres non-linéaires vs endommagement localisé

Pour finir, seules quelques études se sont appliquées à établir une relation opérationnelle entre un paramètre non-linéaire et un endommagement localisé matérialisé par la propagation d'une seule fissure principale. Straka (Straka *et al.*, 2008) observe une saturation de α_f mais pas de β à mesure que le nombre de cycles d'endommagement augmente. Courtney (Courtney *et al.*, 2008) a trouvé une faible corrélation entre la longueur de la fissure et la non-linéarité classique (combinant β et δ) qui tend à saturer quand la longueur augmente. Notons qu'il n'y a que quatre échantillons. Duffour (Duffour *et al.*, 2006) observe une corrélation très moyenne (dispersion des points) entre l'aire de la fissure et le paramètre non-linéaire classique β . De plus un échantillon est très non-linéaire sans que l'endommagement mesuré soit supérieur aux autres. Donskoy (Donskoy *et al.*, 2001) trouve une bonne corrélation entre la non-linéarité classique β et la longueur de la profondeur de la fissure jusqu'à ce qu'elle représente 50% de l'épaisseur totale de l'échantillon. A partir de cette valeur, la non-linéarité de l'échantillon augmente très rapidement, la rupture est imminente. Enfin Zardan (Zardan *et al.*, 2010) mesure une corrélation « parfaite » entre la longueur de la fissure et α_f . Par contre les barres d'erreur sont très grandes ce qui relativise le résultat.

En conclusion, la relation opérationnelle entre un paramètre non-linéaire (classique ou non) et une caractéristique d'endommagement n'a pas encore été établie, que ce soit pour un endommagement non localisé (microfissures ou dislocations diffuses) ou localisé (initiation et propagation d'une microfissure). A cela s'ajoute la nécessité d'une évaluation systématique des erreurs de mesures, de la reproductibilité intra et inter échantillons ainsi que d'une comparaison non-biaisée avec les paramètres linéaires (vitesse, module et atténuation), afin de pouvoir vraiment conclure dans quels cas le CND basé sur l'acoustique non-linéaire a vraiment un intérêt.

3.4 Les techniques d'acoustique non-linéaire appliquées à l'os

Après ce bref aperçu des techniques d'acoustique non-linéaire en CND et de leur potentiel à suivre l'endommagement progressif des matériaux, nous allons présenter les quelques études où ces techniques ont été appliquées à l'os.

Il semble que la première tentative d'application de ces techniques à l'os ait été réalisée par une équipe norvégienne (Hoff *et al.*, 2003; Engan *et al.*, 2006). Leur but était de

pouvoir distinguer des patients ostéoporotiques ou ostéopéniques des patients sains. Les tests ont été directement réalisés *in-vivo* en mesurant l'amplitude de la seconde harmonique lors de la propagation d'un train d'impulsions ultrasonores dans le talon (i.e. à travers le calcanéum, majoritairement trabéculaire). Les résultats préliminaires montrent que l'amplitude relative de la seconde harmonique est différente suivant si le patient est diagnostiqué ostéoporotique ou non. Notons que la relation entre la fondamentale et la seconde harmonique n'est pas quadratique comme le prédit la théorie. Dans cette étude, nous n'avons aucune idée du mécanisme qui serait à l'origine de l'accumulation non-linéaire ni où la non-linéarité serait créée : dans l'os cortical ou l'os trabéculaire ?

Une autre étude menée par Kharin et Sutin (Kharin *et al.*, 2007) tente de détecter les sujets suspectés ostéoporotique suivant leur âge. Il est reconnu que la densité de microfissures augmentent avec l'âge (Schaffler *et al.*, 1995) (voir chapitre 1). Les auteurs utilisent le principe de retournement temporel combiné au NWMS pour focaliser un maximum d'énergie dans des échantillons de calcanéum (os trabéculaire). Ils trouvent que les fréquences sommes dans les os provenant des personnes âgées (>80 ans) sont supérieures à 10dB. Suite à cette communication dans un congrès, aucun article n'a été publié.

Enfin dans une étude récente (Zacharias *et al.*, 2009) tente à nouveau de distinguer les os ostéoporotiques des os sains. Cette fois-ci, les expériences sont menées sur deux cubes d'os trabéculaire calibrés (40x40x40mm³) (un sain et un ostéoporotique). Ils combinent les techniques NRUS et NWMS. Les résultats sont à prendre avec beaucoup de précaution car les conditions expérimentales sont loin d'être suffisantes. Premièrement, nous ne savons pas sur quel critère les deux os ont été désignés sain ou malade. Deuxièmement, la validation du dispositif expérimental est insuffisante (pas d'information sur le mode excité, pas de validation de la linéarité du dispositif, pas de barre d'erreur, seulement deux niveaux d'amplitude d'excitation). Ils ne donnent aucune assurance que la non-linéarité mesurée ne provienne pas du couplage entre deux modes très proches ou du mauvais contact entre l'échantillon d'os et le pot vibrant (Duffour *et al.*, 2006).

Dans toutes ces études, les auteurs cherchent à diagnostiquer l'ostéoporose. Or le lien entre l'ostéoporose et l'augmentation de la densité ou la taille des microfissures n'est pas clairement établi (voir Chapitre 1). Par contre certains traitement de l'ostéoporose pourrait avoir des effets néfastes sur le mécanisme de remodelage de l'os, favorisant l'accumulation de microfissures (Mashiba *et al.*, 2000) même si c'est encore l'objet d'une controverse

(Chapurlat *et al.*, 2007). L'activité physique soutenue serait aussi une source de fragilisation de l'os par l'accumulation de microfissures (Frost, 1960; Burr *et al.*, 1985).

D'autres études se sont donc focalisées plus spécifiquement sur le micro-endommagement osseux, qu'il soit causé par l'ostéoporose ou non, car aucune technique ne permet actuellement de mesurer la quantité de micro-endommagement osseux aussi bien *in-vivo* qu'*in-vitro*. Notre équipe a mené des études sur des diaphyses fémorales (os cortical) humaines et bovines ayant subi un endommagement progressif par fatigue mécanique (Muller *et al.*, 2005; Muller *et al.*, 2006; Ulrich *et al.*, 2007b; Muller *et al.*, 2008). La non-linéarité des échantillons a été évaluée à chaque étape d'endommagement par NRUS (Muller *et al.*, 2005; Muller *et al.*, 2006; Muller *et al.*, 2008) ou par NWMS (Ulrich *et al.*, 2007b), deux techniques permettant d'avoir une évaluation globale de l'endommagement. Dans les deux cas, la non-linéarité augmente après chaque étape d'endommagement (réduction du module élastique mécanique). Nous pouvons donc raisonnablement penser que les mesures NRUS et NWMS sont sensibles à l'endommagement osseux. Des questions restent en suspend : l'endommagement créé lors des tests de fatigue est-il proche d'un endommagement physiologique ? Quelle est la taille, la localisation et la densité des microfissures créées par les tests de fatigue ? Quels liens existent entre la non-linéarité et les caractéristiques de l'endommagement ? Notons que dans l'étude de Muller (Muller *et al.*, 2008), la non-linéarité non classique (α) mesurée sur les échantillons initiales est assez bien corrélée à l'âge, or quelques études ont montré que la densité de fissure augmentait avec l'âge (Schaffler *et al.*, 1995; Zioupos, 2001). Cette dernière remarque nous pousse à penser que les techniques d'acoustiques non-linéaires pourraient être sensibles à un micro-endommagement osseux *in-vivo*.

Une autre équipe s'est penchée sur l'évaluation du micro-endommagement osseux dans l'os trabéculaire (e.g. calcanéum). Pour réaliser cette étude, Renaud a développé une nouvelle technique basée sur l'acousto-élasticité dynamique (DAET) (Renaud *et al.*, 2008a; b; Renaud *et al.*, 2009; Renaud *et al.*, 2011) qui permet d'obtenir différents types de non-linéarité (voir paragraphe 3.1.3) mais aussi de faire une cartographie 2-D des paramètres non-linéaires d'une tranche de calcanéum car la mesure est locale (dépend de la largeur du faisceau ultrasonore). Grâce à cette technique, Moreschi (Moreschi *et al.*, 2009) montre que la non-linéarité est différente quand deux zones du calcanéum ont un micro-endommagement différent (la densité de fissures est 2 fois plus importante dans la zone la plus non-linéaire). Ce

résultat remarquable a été confirmé par la sensibilité du DAET à l'endommagement mécaniquement induit sur plusieurs échantillons d'os trabéculaires (Moreschi *et al.*, 2011). Cependant, ces résultats sont modérés par une reproductibilité moyenne de la mesure DAET. Cette même équipe s'est aussi attachée à mesurer les propriétés non-linéaires intrinsèques de l'os en les comparant à d'autres matériaux de référence (Renaud *et al.*, 2008b). Renaud a ainsi combiné les mesures DAET à des mesures d'imagerie vibro-acoustique (Calle *et al.*, 2002; Calle *et al.*, 2003). Le principe de ce type d'imagerie reprend les principes de l'antenne paramétrique (voir paragraphe 3.1.1).

Enfin pour conclure cette partie, un petit nombre de chercheurs s'est intéressé à la modélisation et à la simulation de la propagation d'ondes acoustiques dans un milieu tel que l'os microfissuré. La plupart du temps, la non-linéarité de l'os est modélisée par de la non-linéarité classique (Cleveland *et al.*, 2006; Bochud *et al.*, 2011) telle que le définit le développement en série de Taylor de l'expression de la relation contrainte/déformation issue de la théorie de Landau (voir paragraphe 3.1.1). Une seule étude (Liu *et al.*, 2011) simule la propagation d'ondes dans un os cortical ayant une microfissure. L'os est modélisé par un tube non poreux et non atténuant, ayant des propriétés élastiques isotropiques. La non-linéarité classique de l'os est négligée. Seule la non-linéarité de la microfissure est modélisée à l'aide du modèle *PM-Space* qui reproduit le comportement élastique hystérétique observé dans les matériaux microfissurés (bétons, métaux) ou microinhomogènes (roches) (voir chapitre 2). Ils utilisent en plus le retournement temporel pour ne refocaliser que la partie non-linéaire du signal et ainsi localiser la présence de la microfissure.

Les quelques études d'acoustiques non-linéaires dans l'os, en particulier celles dédiées au suivi de l'endommagement osseux, sont encourageantes. Bien qu'aucune relation opérationnelle n'est été encore établie avec les caractéristiques des microfissures, ces études prouvent que les techniques d'acoustiques non-linéaires issues du CND sont sensibles aux modifications de la structure de l'os.

3.5 Conclusion

A travers ce chapitre, nous avons pu balayer un large spectre de techniques d'acoustique non-linéaire plus particulièrement dédiées au contrôle non destructif. Ces techniques peuvent être simples à mettre en œuvre et pragmatiques, comme l'excitation des non-linéarités par un marteau d'impact, ou bien nécessiter une électronique et un traitement

du signal plus complexe, comme le retournement temporel (TRNEWS). Certains chercheurs se sont focalisés sur la visualisation et la localisation des microfissures tandis que d'autres tentent d'établir des liens qualitatifs ou quantitatifs entre un paramètre physique (densité de fissures, présence de dislocation, état chimique...) et le paramètre non-linéaire mesuré. Malgré tout, aucune relation opérationnelle entre un paramètre non-linéaire (classique ou non) et une caractéristique de l'endommagement n'a encore été clairement établie, que ce soit pour un endommagement non localisé (microfissures ou dislocations diffuses) ou localisé (initiation et propagation d'une microfissure). Par contre, bien que les études comparatives soient peu nombreuses, il semble clair maintenant que la non-linéarité hystérétique (α_f et α_Q) est plus sensible que la non-linéarité classique à l'endommagement progressif des matériaux. Enfin, nous avons vu qu'il était nécessaire que les études à venir évaluent systématiquement les erreurs de mesure, la reproductibilité intra et inter échantillons ainsi que les paramètres linéaires (vitesse, module et atténuation). Sans cet effort important de la part de la communauté scientifique en CND par acoustique non-linéaire, il sera difficile de faire accepter ces nouveaux outils auprès des ingénieurs.

Bibliographie

- Antonaci, P., Bruno, C., Bocca, P., Scalerandi, M., and Gliozzi, A. (2010). "Nonlinear ultrasonic evaluation of load effects on discontinuities in concrete," *Cement and Concrete Research* **40**, 340-346.
- Aymerich, F., and Staszewski, W. (2010). "Experimental Study of Impact-Damage Detection in Composite Laminates using a Cross-Modulation Vibro-Acoustic Technique," *Structural Health Monitoring* **9**, 541.
- Bentahar, M., and El Guerjouma, R. (2009). "Monitoring progressive damage in polymer-based composite using nonlinear dynamics and acoustic emission," *The Journal of the Acoustical Society of America* **125**, EL39.
- Bochud, N., Grimal, Q., Hauptert, S., Laugier, P., and Rus, G. (2011). "A nonlinear stratified model to predict ultrasonic wave propagation in trabecular bone," in *4th European Symposium on Ultrasonic Characterization of Bone* (Jyväskylä, Finland).
- Bou Matar, O., Li, Y., and van den Abeele, K. (2009). "On the use of a chaotic cavity transducer in nonlinear elastic imaging," *Applied Physics Letters* **95**, 1913.
- Breazeale, M., and Thompson, D. (1963). "Finite amplitude ultrasonic waves in aluminum," *Applied Physics Letters* **3**, 77.
- Bruno, C., Gliozzi, A., Scalerandi, M., and Antonaci, P. (2009). "Analysis of elastic nonlinearity using the scaling subtraction method," *Physical Review B* **79**, 64108.
- Buck, O., and Morris, W. L. (1978). "Acoustic Harmonic-Generation at Unbonded Interfaces and Fatigue Cracks," *Journal of the Acoustical Society of America* **64**, S33-S33.
- Burr, D. B., Martin, R. B., Schaffler, M. B., and Radin, E. L. (1985). "Bone remodeling in response to in vivo fatigue microdamage," *Journal of Biomechanics* **18**, 189-200.
- Calle, S., Remenieras, J. P., Matar, O. B., Defontaine, M., and Patat, F. (2003). "Application of nonlinear phenomena induced by focused ultrasound to bone imaging," *Ultrasound in Medicine and Biology* **29**, 465-472.
- Calle, S., Remenieras, J. P., Matar, O. B., and Patat, F. (2002). "Presence of nonlinear interference effects as a source of low frequency excitation force in vibro-acoustography," *Ultrasonics* **40**, 873-878.
- Cantrell, J., and Yost, W. (2001). "Nonlinear ultrasonic characterization of fatigue microstructures," *International Journal of fatigue* **23**, 487-490.
- Cantrell, J. H. (2006). "Dependence of microelastic-plastic nonlinearity of martensitic stainless steel on fatigue damage accumulation," *Journal of applied physics* **100**, 063508.
- Cantrell, J. H., and Yost, W. T. (1997). "Effect of precipitate coherency strains on acoustic harmonic generation," *Journal of applied physics* **81**, 2957.
- Chapurlat, R. D., Arlot, M., Burt Pichat, B., Chavassieux, P., Roux, J. P., Portero Muzy, N., and Delmas, P. D. (2007). "Microcrack Frequency and Bone Remodeling in Postmenopausal Osteoporotic Women on Long Term Bisphosphonates: A Bone Biopsy Study," *Journal of Bone and Mineral Research* **22**, 1502-1509.
- Chen, J., Jayapalan, A. R., Kim, J. Y., Kurtis, K. E., and Jacobs, L. J. (2010). "Rapid evaluation of alkali-silica reactivity of aggregates using a nonlinear resonance spectroscopy technique," *Cement and Concrete Research* **40**, 914-923.
- Chen, X., Kim, J. Y., Kurtis, K., Qu, J., Shen, C., and Jacobs, L. (2008). "Characterization of progressive microcracking in Portland cement mortar using nonlinear ultrasonics," *NDT & E International* **41**, 112-118.
- Cleveland, R. O., Johnson, P. A., Muller, M., Talmant, M., Padilla, F., and Laugier, P. (2006). "Modelling Nonlinear Ultrasound Propagation in Bone," p. 333.

- Courtney, C. R. P., Drinkwater, B. W., Neild, S. A., and Wilcox, P. D. (2008). "Factors affecting the ultrasonic intermodulation crack detection technique using bispectral analysis," *NDT & E International* **41**, 223-234.
- Donskoy, D., Sutin, A., and Ekimov, A. (2001). "Nonlinear acoustic interaction on contact interfaces and its use for nondestructive testing," *Ndt & E International* **34**, 231-238.
- Donskoy, D. M., and Sutin, A. M. (1998). "Vibro-acoustic modulation nondestructive evaluation technique," *Journal of intelligent material systems and structures* **9**, 765.
- Dos Santos, S., and Prevorovsky, Z. (2011). "Imaging of human tooth using ultrasound based chirp-coded nonlinear time reversal acoustics," *Ultrasonics*.
- Duffour, P., Morbidini, M., and Cawley, P. (2006). "A study of the vibro-acoustic modulation technique for the detection of cracks in metals," *The Journal of the Acoustical Society of America* **119**, 1463.
- Engan, H., Ingebrigtsen, K., Oygarden, K., Hagen, E., and Hoff, L. (2006). "Nonlinear Ultrasound Detection of Osteoporosis," in *Ultrasonics IEEE Symposium (IEEE)*, pp. 2096-2099.
- Fillinger, L., Zaitsev, V., Gusev, V., and Castagnède, B. (2006). "Wave self-modulation in an acoustic resonator due to self-induced transparency," *EPL (Europhysics Letters)* **76**, 229.
- Fink, M. (1993). "Time-reversal mirrors," *Journal of Physics D: Applied Physics* **26**, 1333.
- Fink, M. (1997). "Time reversed acoustics," *Physics Today* **50**, 34.
- Frinking, P. J. A., Bouakaz, A., Kirkhorn, J., Ten Cate, F. J., and De Jong, N. (2000). "Ultrasound contrast imaging: current and new potential methods," *Ultrasound in medicine & biology* **26**, 965-975.
- Frost, H. (1960). "Presence of microscopic cracks in vivo in bone," *Henry Ford Hosp Med Bull* **8**, 35.
- Frouin, J., Sathish, S., Matikas, T. E., and Na, J. K. (1999). "Ultrasonic linear and nonlinear behavior of fatigued Ti-6Al-4V," *Journal of materials research* **14**, 1295-1298.
- Gliozzi, A., Nobili, M., and Scalerandi, M. (2006). "Modelling localized nonlinear damage and analysis of its influence on resonance frequencies," *Journal of Physics D: Applied Physics* **39**, 3895.
- Goursolle, T., Dos Santos, S., Matar, O. B., and Calle, S. (2008). "Non-linear based time reversal acoustic applied to crack detection: Simulations and experiments," *International Journal of Non-Linear Mechanics* **43**, 170-177.
- Gremaud, G., Bujard, M., and Benoit, W. (1987). "The coupling technique: A two-wave acoustic method for the study of dislocation dynamics," *Journal of applied physics* **61**, 1795-1805.
- Guyer, R. A., and Johnson, P. A. (1999). "Nonlinear mesoscopic elasticity: Evidence for a new class of materials," *Physics Today* **52**, 30-36.
- Guyer, R. A., and Johnson, P. A. (2009). *Nonlinear Mesoscopic Elasticity: The Complex Behaviour of Rocks, Soil, Concrete* (Wiley-VCH, Weinheim).
- Guyer, R. A., McCall, K. R., and Boitnott, G. N. (1995). "Hysteresis, Discrete Memory, and Nonlinear-Wave Propagation in Rock - a New Paradigm," *Physical Review Letters* **74**, 3491-3494.
- Hamilton, M. F., and Blackstock, D. T. (1998). *Nonlinear acoustics* (Academic Pr).
- Hikata, A., Chick, B. B., and Elbaum, C. (1965). "Dislocation contribution to the second harmonic generation of ultrasonic waves," *Journal of Applied Physics* **36**, 229-236.
- Hoff, L., Oygarden, K., Hagen, E. K., and Falch, J. A. (2003). "Diagnosis of osteoporosis using nonlinear ultrasound," (IEEE), pp. 1010-1013 Vol. 1011.

- Jhang, K. Y. (2009). "Nonlinear ultrasonic techniques for nondestructive assessment of micro damage in material: A review," *International journal of precision engineering and manufacturing* **10**, 123-135.
- Jia, X., Brunet, T., and Laurent, J. (2011). "Elastic weakening of a dense granular pack by acoustic fluidization: Slipping, compaction, and aging," *Physical Review E* **84**, 020301.
- Johnson, P., and Sutin, A. (2005). "Slow dynamics and anomalous nonlinear fast dynamics in diverse solids," *Journal of the Acoustical Society of America* **117**, 124-130.
- Johnson, P. A. (1999). "The new wave in acoustic testing," *Materials World* **7**, 544-546.
- Johnson, P. A., Zinszner, B., and Rasolofosaon, P. N. J. (1996). "Resonance and elastic nonlinear phenomena in rock," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **101**, 11553-11564.
- Kawashima, K., Murase, M., Yamada, R., Matsushima, M., Uematsu, M., and Fujita, F. (2006). "Nonlinear ultrasonic imaging of imperfectly bonded interfaces," *Ultrasonics* **44**, e1329-e1333.
- Kazakov, V. V., Sutin, A., and Johnson, P. A. (2002). "Sensitive imaging of an elastic nonlinear wave-scattering source in a solid," *Applied Physics Letters* **81**, 646.
- Kharin, N., Sutin, A., Kyoung, B., Davis, B., and Sarvazyan, A. (2007). "Diagnosis of osteoporosis using novel nonlinear acoustic method," *Osteoporosis International* **18**, S203-S204.
- Kim, C., Park, I. K., and Jhang, K. Y. (2009). "Nonlinear ultrasonic characterization of thermal degradation in ferritic 2.25 Cr-1Mo steel," *NDT & E International* **42**, 204-209.
- Kim, J. Y., Jacobs, L. J., Qu, J., and Littles, J. W. (2006). "Experimental characterization of fatigue damage in a nickel-base superalloy using nonlinear ultrasonic waves," *The Journal of the Acoustical Society of America* **120**, 1266.
- Kim, J. Y., Yakovlev, V., and Rokhlin, S. (2004). "Surface acoustic wave modulation on a partially closed fatigue crack," *The Journal of the Acoustical Society of America* **115**, 1961.
- Kodjo, A. S., Rivard, P., Cohen-Tenoudji, F., and Gallias, J. L. (2011). "Impact of the alkali-silica reaction products on slow dynamics behavior of concrete," *Cement and Concrete Research*.
- Krohn, N., Stoessel, R., and Busse, G. (2002). "Acoustic non-linearity for defect selective imaging," *Ultrasonics* **40**, 633-637.
- Kustov, S., Gremaud, G., Benoit, W., Golyandin, S., Sapozhnikov, K., Nishino, Y., and Asano, S. (1999). "Strain amplitude-dependent anelasticity in Cu-Ni solid solution due to thermally activated and athermal dislocation-point obstacle interactions," *Journal of Applied Physics* **85**, 1444-1459.
- Lacouture, J. C., Johnson, P. A., and Cohen-Tenoudji, F. (2003). "Study of critical behavior in concrete during curing by application of dynamic linear and nonlinear means," *Journal of the Acoustical Society of America* **113**, 1325-1332.
- Lakes, R. (2009). *Viscoelastic Materials* (Cambridge Univ Pr).
- Landau, L., and Lifshitz, E. (1986). *Theory of Elasticity*. Pergamon (Oxford, UK).
- Lesnicki, K. J., Kim, J. Y., Kurtis, K., and Jacobs, L. J. (2011). "CHARACTERIZATION OF ALKALI-SILICA REACTION IN CONCRETE SPECIMENS USING A NONLINEAR VIBRATION TECHNIQUE," p. 1267.
- Liu, X., Dao, Z., Zhu, J., Qu, W., Gong, X., Van Den Abeele, K., and Ma, L. (2010). "Localization of material defects using nonlinear resonant ultrasound spectroscopy under asymmetric boundary conditions," *Physics Procedia* **3**, 55-61.

- Liu, Y., Guo, X., Da, Z., Zhang, D., and Gong, X. (2011). "Imaging Cracks in Bones Using Acoustic Nonlinearity: A Simulation Study," *Acta Acustica united with Acustica* **97**, 728-733.
- Mashiba, T., Hirano, T., Turner, C. H., Forwood, M. R., Johnston, C. C., and Burr, D. B. (2000). "Suppressed bone turnover by bisphosphonates increases microdamage accumulation and reduces some biomechanical properties in dog rib," *Journal of Bone and Mineral Research* **15**, 613-620.
- Mason, W. (1956). "Internal friction and fatigue in metals at large strain amplitudes," *The Journal of the Acoustical Society of America* **28**, 1207.
- McCall, K. R., and Guyer, R. A. (1994). "Equation of State and Wave-Propagation in Hysteretic Nonlinear Elastic-Materials," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **99**, 23887-23897.
- Meegan Jr, G. D., Johnson, P. A., Guyer, R. A., and McCall, K. R. (1993). "Observations of nonlinear elastic wave behavior in sandstone," *The Journal of the Acoustical Society of America* **94**, 3387.
- Meo, M., Polimeno, U., and Zumpano, G. (2008). "Detecting damage in composite material using nonlinear elastic wave spectroscopy methods," *Applied composite materials* **15**, 115-126.
- Migliori, A., Sarrao, J., Visscher, W. M., Bell, T., Lei, M., Fisk, Z., and Leisure, R. (1993). "Resonant ultrasound spectroscopic techniques for measurement of the elastic moduli of solids," *Physica B: Condensed Matter* **183**, 1-24.
- Moreschi, H., Calle, S., Guerard, S., Mitton, D., Renaud, G., and Defontaine, M. (2009). "Monitoring of trabecular bone induced microdamage using a nonlinear wave-coupling technique," pp. 550-553.
- Moreschi, H., Callé, S., Guerard, S., Mitton, D., Renaud, G., and Defontaine, M. (2011). "Monitoring trabecular bone microdamage using a dynamic acousto-elastic testing method," *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part H: Journal of Engineering in Medicine* **225**, 1-12.
- Morris, W. L., Buck, O., and Inman, R. V. (1979). "Acoustic Harmonic-Generation Due to Fatigue Damage in High-Strength Aluminum," *Journal of Applied Physics* **50**, 6737-6741.
- Moussatov, A., Gusev, V., and Castagnede, B. (2003). "Self-induced hysteresis for nonlinear acoustic waves in cracked material," *Physical Review Letters* **90**.
- Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., Johnson, P., and Laugier, P. (2008). "Nonlinear ultrasound can detect accumulated damage in human bone," *Journal of Biomechanics* **41**, 1062-1068.
- Muller, M., Sutin, A., Guyer, R., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2005). "Nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) applied to damage assessment in bone," *Journal of the Acoustical Society of America* **118**, 3946-3952.
- Muller, M., Tencate, J. A., Darling, T. W., Sutin, A., Guyer, R. A., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2006). "Micro-damage assessment using non-linear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) techniques: A feasibility study," *Ultrasonics* **44**, E245-E249.
- Murayama, R., and Ayaka, K. (2007). "Evaluation of fatigue specimens using EMATs for nonlinear ultrasonic wave detection," *Journal of Nondestructive Evaluation* **26**, 115-122.
- Nagy, P. B. (1998). "Fatigue damage assessment by nonlinear ultrasonic materials characterization," *Ultrasonics* **36**, 375-381.
- Nazarov, V., Kolpakov, A., and Radostin, A. (2007). "Experimental study of nonlinear acoustical effects in limestone," *Acoustical Physics* **53**, 217-225.

- Nazarov, V. E. (1991). "NONLINEAR ACOUSTICAL EFFECTS IN ANNEALED COPPER," *Soviet Physics Acoustics-Ussr* **37**, 75-78.
- Nazarov, V. E. (1999). "Amplitude-dependent internal friction of lead," *Fizika Metallov I Metallovedenie* **88**, 82-90.
- Nazarov, V. E. (2001). "Experimental investigation of amplitude-dependent internal friction of polycrystalline zinc," *Physics of Metals and Metallography* **92**, 592-601.
- Nazarov, V. E., and Kolpakov, A. B. (2000). "Experimental investigations of nonlinear acoustic phenomena in polycrystalline zinc," *Journal of the Acoustical Society of America* **107**, 1915-1921.
- Nowick, A. S. (1950). "VARIATION OF AMPLITUDE-DEPENDENT INTERNAL FRICTION IN SINGLE CRYSTALS OF COPPER WITH FREQUENCY AND TEMPERATURE," *Physical Review* **80**, 249-257.
- Ohara, Y., Horinouchi, S., Hashimoto, M., Shintaku, Y., and Yamanaka, K. (2010). "Nonlinear ultrasonic imaging method for closed cracks using subtraction of responses at different external loads," *Ultrasonics*.
- Ostrovsky, L. A., and Johnson, P. A. (2001). "Dynamic nonlinear elasticity in geomaterials," *Rivista Del Nuovo Cimento* **24**, 1-46.
- Pasqualini, D., Heitmann, K., TenCate, J. A., Habib, S., Higdon, D., and Johnson, P. A. (2007). "Nonequilibrium and nonlinear dynamics in Berea and Fontainebleau sandstones: Low-strain regime," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **112**.
- Payan, C., Garnier, V., and Moysan, J. (2010). "Effect of water saturation and porosity on the nonlinear elastic response of concrete," *Cement and Concrete Research* **40**, 473-476.
- Payan, C., Garnier, V., Moysan, J., and Johnson, P. A. (2007). "Applying nonlinear resonant ultrasound spectroscopy to improving thermal damage assessment in concrete," *Journal of the Acoustical Society of America* **121**, EL125-EL130.
- Rasolofosaon, P., Zinszner, B., and Johnson, P. (1997). "Propagation des ondes élastiques dans les matériaux non linéaires Aperçu des résultats de laboratoire obtenus sur les roches et des applications possibles en géophysique," *Oil & Gas Science and Technology* **52**, 585-608.
- Read, T. A. (1940). "The internal friction of single metal crystals," *Physical Review* **58**, 371-380.
- Renaud, G., Calle, S., Remenieras, J. P., and Defontaine, M. (2008a). "Exploration of trabecular bone nonlinear elasticity using time-of-flight modulation," *Ieee Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control* **55**, 1497-1507.
- Renaud, G., Calle, S., Remenieras, J. P., and Defontaine, M. (2008b). "Non-linear acoustic measurements to assess crack density in trabecular bone," *International Journal of Non-Linear Mechanics* **43**, 194-200.
- Renaud, G., Callé, S., and Defontaine, M. (2009). "Remote dynamic acoustoelastic testing: Elastic and dissipative acoustic nonlinearities measured under hydrostatic tension and compression," *Applied Physics Letters* **94**, 011905.
- Renaud, G., Talmant, M., Callé, S., Defontaine, M., and Laugier, P. (2011). "Nonlinear elastodynamics in micro-inhomogeneous solids observed by head wave based dynamic acoustoelastic testing," *J. Acoust. Soc. Am.* **130**.
- Rivière, J., Renaud, G., Hauptert, S., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. (2010). "Nonlinear acoustic resonances to probe a threaded interface," *Journal of Applied Physics* **107**, 4901.
- Rivière, J., Ulrich, T., Le Bas, P., Hauptert, S., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2012). "Time reversed elastic nonlinearity diagnostic applied to mock osseointegration monitoring applying two experimental models," *Journal of the Acoustical Society of America*.

- Sagar, S. P., Metya, A., Ghosh, M., and Sivaprasad, S. (2010). "Effect of microstructure on non-linear behavior of ultrasound during low cycle fatigue of pearlitic steels," *Materials Science and Engineering: A*.
- Scalerandi, M., Gliozzi, A., and Bruno, C. (2012). "Detection and location of cracks using loss of reciprocity in ultrasonic waves propagation," *Journal of the Acoustical Society of America* **131**.
- Scalerandi, M., Gliozzi, A., Bruno, C., and Van Den Abeele, K. (2008). "Nonlinear acoustic time reversal imaging using the scaling subtraction method," *Journal of Physics D: Applied Physics* **41**, 215404.
- Schaffler, M. B., Choi, K., and Milgrom, C. (1995). "Aging and matrix microdamage accumulation in human compact bone," *Bone* **17**, 521-525.
- Solodov, I., Pfliederer, K., and Busse, G. (2006a). "Nonlinear acoustic NDE: inherent potential of complete nonclassical spectra," *Universality of Nonclassical Nonlinearity*, 467-486.
- Solodov, I., Pfliederer, K., Gerhard, H., Predak, S., and Busse, G. (2006b). "New opportunities for NDE with air-coupled ultrasound," *Ndt & E International* **39**, 176-183.
- Solodov, I., Wackerl, J., Pfliederer, K., and Busse, G. (2004). "Nonlinear self-modulation and subharmonic acoustic spectroscopy for damage detection and location," *Applied physics letters* **84**, 5386.
- Solodov, I. Y. (1998). "Ultrasonics of non-linear contacts: propagation, reflection and NDE-applications," *Ultrasonics* **36**, 383-390.
- Solodov, I. Y., Krohn, N., and Busse, G. (2002). "CAN: an example of nonclassical acoustic nonlinearity in solids," *Ultrasonics* **40**, 621-625.
- Straka, L., Yagodzinskyy, Y., Landa, M., and Hänninen, H. (2008). "Detection of structural damage of aluminum alloy 6082 using elastic wave modulation spectroscopy," *NDT & E International* **41**, 554-563.
- Sutin, A., Libbey, B., Fillinger, L., and Sarvazyan, A. (2009). "Wideband nonlinear time reversal seismo-acoustic method for landmine detection," *The Journal of the Acoustical Society of America* **125**, 1906.
- Sutin, A. M., TenCate, J. A., and Johnson, P. A. (2004). "Single-channel time reversal in elastic solids," *The Journal of the Acoustical Society of America* **116**, 2779.
- Tournat, V. (2003). "Effet non linéaire d'auto-démodulation d'amplitude dans les milieux granulaires: théories et expériences."
- Tournat, V., and Gusev, V. (2009). "Nonlinear effects for coda-type elastic waves in stressed granular media," *Physical Review E* **80**, 011306.
- Ulrich, T., Johnson, P., and Sutin, A. (2006). "Imaging nonlinear scatterers applying the time reversal mirror," *The Journal of the Acoustical Society of America* **119**, 1514.
- Ulrich, T., Johnson, P. A., and Guyer, R. A. (2007a). "Interaction dynamics of elastic waves with a complex nonlinear scatterer through the use of a time reversal mirror," *Physical review letters* **98**, 104301.
- Ulrich, T. J., Johnson, P. A., Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., and Laugier, P. (2007b). "Application of nonlinear dynamics to monitoring progressive fatigue damage in human cortical bone," *Applied Physics Letters* **91**.
- Van Damme, B., Van Den Abeele, K., Li, Y. F., and Matar, O. B. (2011). "Time reversed acoustics techniques for elastic imaging in reverberant and nonreverberant media: An experimental study of the chaotic cavity transducer concept," *Journal of Applied Physics* **109**, 104910.

- Van den Abeele, K. (2007). "Multi-mode nonlinear resonance ultrasound spectroscopy for defect imaging: An analytical approach for the one-dimensional case," *Journal of the Acoustical Society of America* **122**, 73-90.
- Van den Abeele, K., Campos-Pozuelo, C., Gallego Juárez, J. A., Windels, F., and Bollen, B. (2002). "Analysis of the nonlinear reverberation of titanium alloys fatigued at high amplitude ultrasonic vibration."
- Van den Abeele, K., Carmeliet, J., Ten Cate, J. A., and Johnson, P. A. (2000a). "Nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS) techniques to discern material damage, Part II: Single-mode nonlinear resonance acoustic spectroscopy," *Research in Nondestructive Evaluation* **12**, 31-42.
- Van den Abeele, K., and De Visscher, J. (2000). "Damage assessment in reinforced concrete using spectral and temporal nonlinear vibration techniques," *Cement and Concrete Research* **30**, 1453-1464.
- Van den Abeele, K., Desadeleer, W., De Schutter, G., and Wevers, M. (2009a). "Active and passive monitoring of the early hydration process in concrete using linear and nonlinear acoustics," *Cement and concrete research* **39**, 426-432.
- Van Den Abeele, K., and Johnson, P. A. (1996). "Elastic pulsed wave propagation in media with second- or higher-order nonlinearity. Part II. Simulation of experimental measurements on Berea sandstone," *Journal of the Acoustical Society of America* **99**.
- Van den Abeele, K., Le Bas, P., Van Damme, B., and Katkowski, T. (2009b). "Quantification of material nonlinearity in relation to microdamage density using nonlinear reverberation spectroscopy: Experimental and theoretical study," *The Journal of the Acoustical Society of America* **126**, 963.
- Van den Abeele, K., Sutin, A., Carmeliet, J., and Johnson, P. A. (2001a). "Micro-damage diagnostics using nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS)," *Ndt & E International* **34**, 239-248.
- Van den Abeele, K., Van de Velde, K., and Carmeliet, J. (2001b). "Inferring the degradation of pultruded composites from dynamic nonlinear resonance measurements," *Polymer Composites* **22**, 555-567.
- Van den Abeele, K. E. A., Johnson, P. A., and Sutin, A. (2000b). "Nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS) techniques to discern material damage, part I: Nonlinear wave modulation spectroscopy (NWMS)," *Research in Nondestructive Evaluation* **12**, 17-30.
- Van Den Abeele, K. E. A., Sutin, A., Carmeliet, J., and Johnson, P. A. (2001). "Micro-damage diagnostics using nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS)," *Ndt & E International* **34**, 239-248.
- Visscher, W. M., Migliori, A., Bell, T. M., and Reinert, R. A. (1991). "On the normal modes of free vibration of inhomogeneous and anisotropic elastic objects," *Acoustical Society of America Journal* **90**, 2154-2162.
- Winkler, K. W., and Liu, X. (1996). "Measurements of third-order elastic constants in rocks," *The Journal of the Acoustical Society of America* **100**, 1392.
- Yost, W., and Cantrell, J. (1992). "The effects of fatigue on acoustic nonlinearity in aluminum alloys," (IEEE), pp. 947-955 vol. 942.
- Zacharias, K., Balabanidou, E., Hatzokos, I., Rekanos, I. T., and Trochidis, A. (2009). "Microdamage evaluation in human trabecular bone based on nonlinear ultrasound vibro-modulation (NUVM)," *Journal of Biomechanics* **42**, 581-586.
- Zagrai, A., Donskoy, D., Chudnovsky, A., and Golovin, E. (2008). "Micro-and Macroscale Damage Detection Using the Nonlinear Acoustic Vibro-Modulation Technique," *Research in Nondestructive Evaluation* **19**, 104-128.

- Zaitsev, V., Gusev, V., and Castagnede, B. (2002). "Luxemburg-Gorky effect retooled for elastic waves: A mechanism and experimental evidence," *Physical review letters* **89**, 105502.
- Zaitsev, V., Nazarov, V., Gusev, V., and Castagnede, B. (2006). "Novel nonlinear-modulation acoustic technique for crack detection," *NDT & E International* **39**, 184-194.
- Zaitsev, V., and Sas, P. (2000). "Nonlinear response of a weakly damaged metal sample: A dissipative modulation mechanism of vibro-acoustic interaction," *Journal of Vibration and Control* **6**, 803-822.
- Zaitsev, V. Y., Matveev, L., and Matveyev, A. (2011). "Elastic-wave modulation approach to crack detection: Comparison of conventional modulation and higher-order interactions," *NDT & E international* **44**, 21-31.
- Zardan, J. P., Payan, C., Garnier, V., and Salin, J. (2010). "Effect of the presence and size of a localized nonlinear source in concrete."
- Zheng, Y. P., Maev, R. G., and Solodov, I. Y. (1999). "Nonlinear acoustic applications for material characterization: A review," *Canadian Journal of Physics* **77**, 927-967.
- Zioupos, P. (2001). "Accumulation of in-vivo fatigue microdamage and its relation to biomechanical properties in ageing human cortical bone," *Journal of Microscopy-Oxford* **201**, 270-278.

Chapitre 4.

OPTIMISATION DE LA SPECTROSCOPIE PAR RESONANCE ULTRASONORE NON-LINEAIRE POUR LES MATERIAUX FAIBLEMENT NON-LINEAIRES

La détection précoce du micro-endommagement osseux par des méthodes non-destructives nécessite d'avoir des techniques suffisamment sensibles et précises. Les techniques d'acoustiques non-linéaires, en particulier la spectroscopie par résonance ultrasonore non-linéaire [anglais « *Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy (NRUS)* »], semblent très prometteuses à cet égard. Cependant, nous avons vu dans le chapitre 3 qu'il existe un manque indéniable d'information sur la variabilité des mesures inter et intra échantillons ainsi que sur les causes à l'origine de cette variabilité. Cette problématique est importante et commence à susciter un intérêt croissant dans la communauté non-linéaire (Scalerandi *et al.*, 2010).

Dans ce chapitre, nous présentons une optimisation de la technique NRUS. Cette optimisation doit permettre de minimiser les erreurs de mesures et d'augmenter la précision des valeurs mesurées. Pour cela, nous avons évalué les non-linéarités élastiques et dissipatives non-classiques intrinsèques de divers matériaux ainsi que leur variabilité. Ces matériaux ont été choisis pour balayer un large spectre de degré de non-linéarité allant du moins non-linéaire (aluminium) au plus non-linéaire (roche calcaire). Le protocole décrit dans ce chapitre ne se limite pas à la spectroscopie ultrasonore non-linéaire mais peut très bien s'appliquer à toutes techniques d'acoustiques non-linéaires faisant intervenir plusieurs niveaux d'excitation pour extraire le paramètre non-linéaire.

Nous commencerons tout d'abord par expliquer le nouveau protocole de mesures qui permet d'estimer simultanément les paramètres élastique et dissipatif des matériaux tout en s'affranchissant des facteurs externes et internes de fluctuation de la mesure comme par exemple les effets thermiques. Puis après avoir décrit les résultats, nous tenterons d'identifier

les mécanismes à l'origine des non-linéarités non-classiques observées pour les divers matériaux testés.

4.1 Matériels et méthodes

4.1.1 Les échantillons

Des échantillons issus de différentes classes de matériaux ont été mesurés: (1) des polymères [poly(methyl methacrylate) (PMMA) and Polychlorure de vinyle (PVC)] ne présentant aucun comportement non-linéaire hystérétique, mais seulement une faible non-linéarité classique et communément utilisés comme matériaux de calibration (Johnson *et al.*, 2004); (2) des roches (craie et travertin) présentant une forte élasticité non-linéaire hystérétique; (3) des métaux polycristallins (l'acier inox 304, le laiton et l'aluminium AU4G) généralement considérés comme linéaires ou faiblement non-linéaires par la communauté des chercheurs travaillant sur les roches et les matériaux endommagés; (4) et de l'os cortical bovin sec dont la non-linéarité élastique intrinsèque est inconnu. Le PMMA et le PVC ont servi de matériau de calibration pour s'assurer que le dispositif expérimental (matériel électronique et pastilles piézo-électrique) et le collage ne génèrent pas de non-linéarités hystérétiques parasites.

Pour chaque matériau, trois échantillons ont été testés trois fois après repositionnement pour évaluer la répétabilité de la mesure (sauf pour le PVC, la craie et le travertin où seulement deux échantillons ont été mesurés). Tous les échantillons ont la même forme parallélépipédique avec une taille de 2mm x 4mm x 50mm, sauf pour la craie (6mm x 6mm x 65mm) et le travertin (4mm x 8mm x 50mm) (Fig.1). Ces dimensions ont été choisies de telle sorte que la forme des échantillons soit optimale pour effectuer des tests en flexion 4 points. En effet, comme nous le verrons dans les chapitres 5 et 6, des échantillons d'os cortical humains seront amenés à être endommagés par flexion 4 points au cours de test de fatigue ou de ténacité.

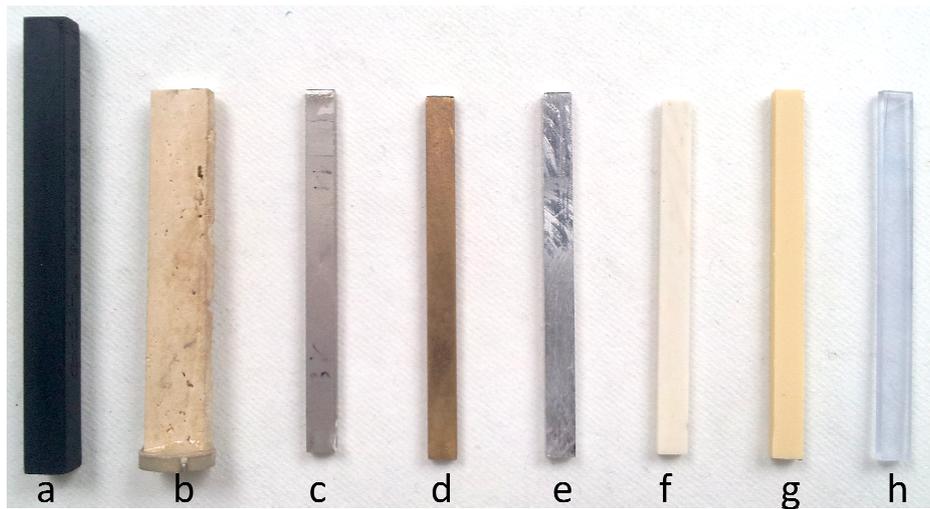


Figure 1 : Echantillon de craie (a), de travertin (b), d'acier (c), de laiton (d), d'aluminium (e), d'os bovin (f), de PVC (g) et de PMMA (h).

4.1.2 Le protocole NRUS

Chaque échantillon est sondé par un sinus balayé [en anglais « *chirp* »] autour des trois premiers modes de résonance du matériau (nous supposons que ce sont des modes de barreau, c'est-à-dire des modes de compression pure sous des conditions de chargement symétrique) (Fig.2). La bande fréquence autour de la fréquence de résonance est $f_0 \pm \Delta f$, où $\Delta f = 5\%$. La source de vibration est générée par une pastille piézo-électrique (PZT 5A, diamètre 7mm, épaisseur 2mm, Fuji Ceramics Corporation, Yamamiya, Japon) collée à l'extrémité de l'échantillon par de la colle cyanoacrylate (Loctite, Henkel, Düsseldorf, Allemagne). L'échantillon est placé sur une mousse pour éviter toute non-linéarité de contact. Le signal d'excitation est un chirp linéaire centré sur la fréquence de résonance linéaire f_0 de chaque échantillon. On considère que la fréquence de référence f_0 correspond à la fréquence de résonance de l'échantillon mesurée pour la plus faible amplitude d'excitation. La durée du balayage fréquentiel, $t \gg Q/(\pi f_0)$ (avec Q le facteur de qualité. Voir paragraphe 3.2.1), est comprise entre 100ms et 1s. Ce compromis permet d'éviter tout échauffement de l'échantillon pendant la mesure tout en s'assurant que l'échantillon atteigne un état stationnaire pour chaque fréquence. L'amplitude de la tension du signal d'entrée a été soigneusement adaptée à tous les échantillons. La tension doit induire (1) une déformation minimale supérieure à 10^{-6} , nécessaire pour atteindre le régime hystérétique (Johnson and Sutin, 2005) et (2) un niveau de déformation maximale inférieure à 10^{-4} pour éviter d'endommager l'échantillon et de décoller la pastille piézo-électrique. Initialement, la fréquence de résonance f_0 et facteur de perte ou d'amortissement Q_0^{-1} sont déterminés pour être ensuite utilisés comme fréquence ou facteur de perte de référence. La fréquence du pic de résonance ainsi que le facteur d'amortissement

sont ensuite mesurés en fonction de la déformation appliquée pour chaque niveau d'excitation. Le protocole expérimental a été déterminé avec précaution afin de garantir que ni la durée d'excitation, ni le niveau de tension, ne puissent générer du conditionnement favorisant l'apparition du phénomène de dynamique lente. Pour s'en assurer, nous avons appliqué la méthode décrite par Johnson et Sutin (Johnson and Sutin, 2005). Pour chaque matériau, un échantillon a été soumis au niveau de déformation maximale ($\epsilon \approx 10^{-4}$) pendant une durée d'excitation de 1s. Aucun phénomène de dynamique lente n'a pu être observé après 3 secondes de récupération et ceci quelque soit le type de matériau. Par la suite, nous avons donc appliqué un délai de 3 secondes afin de s'assurer que l'échantillon retrouve le cas échéant son état initial entre chaque niveau d'excitation.

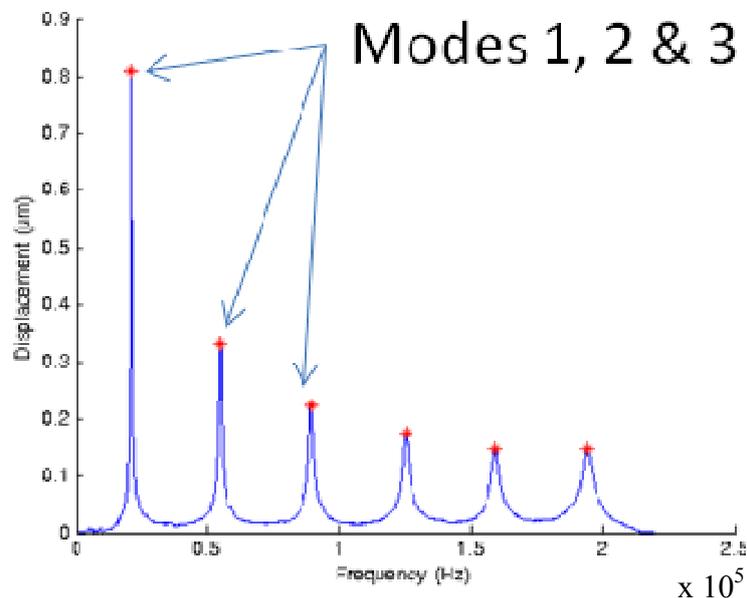


Figure 2 : Exemple des modes de barre d'un échantillon d'os bovin. Les trois premiers modes de compression sont situés entre 20kHz et 100kHz.

Tout au long de ce chapitre, nous ferons l'hypothèse pour les matériaux étudiés, d'un comportement non-linéaire majoritairement non classique et plus particulièrement de type hystérétique quadratique. Cette hypothèse a été vérifiée au préalable sur une série d'échantillons. Ainsi nous pourrions extraire les paramètres non-linéaires hystérétiques α_f et α_Q à partir d'une régression linéaire réalisée sur les données expérimentales tel que décrit par les Eqs. (2.9) et (2.10). Ces deux équations font intervenir la fréquence de référence f_0 et le facteur de perte Q_0^{-1} initialement mesurés au début de l'expérience au plus faible niveau d'amplitude d'excitation. Selon cette procédure, l'échantillon tout comme les conditions expérimentales sont supposés rester dans le même état durant toute l'expérience (pas de

changement de température ni de degré d'humidité, pas de conditionnement ni de phénomène de dynamique lente (Pasqualini *et al.*, 2007; Scalerandi *et al.*, 2010)).

Le niveau de déformation dynamique ε est calculé à partir du déplacement longitudinal u mesuré par vibromètre laser (LSV 1MHz, SIOS, Allemagne), de la vitesse de phase c (déterminée par la méthode du temps de vol) et de la fréquence de référence f_0 :

$$\varepsilon = \frac{2\pi f_0}{c} u \quad (4.1)$$

Pendant toute la durée de l'expérience, la température de la salle est contrôlée ($25^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$). L'échantillon est placé dans une enceinte en polystyrène pour neutraliser les variations locales de température (Fig.3). Enfin la température de l'échantillon est suivie par un thermomètre infrarouge sans contact ayant une résolution de 0.02°C .

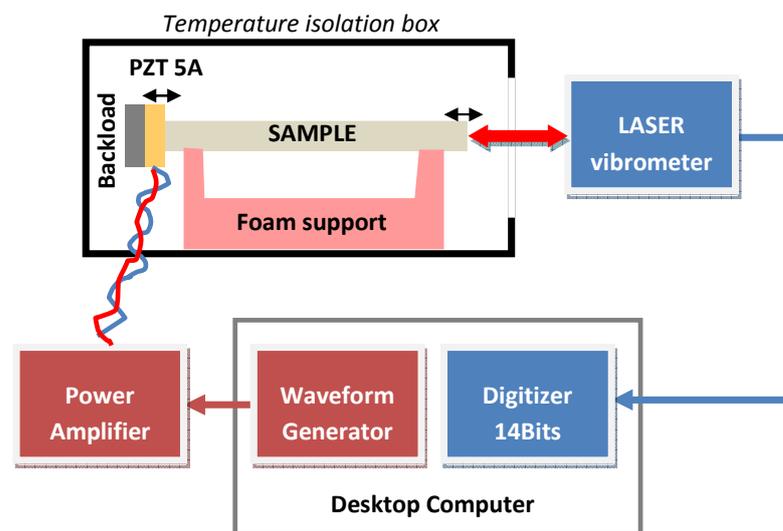


Figure x3: Dispositif expérimentale utilisé pour tous les échantillons lors des mesures NRUS.

4.1.3 La procédure de correction des données

Puisque que la fréquence de résonance et l'atténuation des matériaux sont connues pour varier avec la température, une attention particulière doit être apportée au contrôle de la température des échantillons au cours de l'expérience. Habituellement, les efforts se concentrent sur la régulation de la température en enfermant l'échantillon dans une enceinte climatique régulée en température et humidité. Par exemple, Pasqualini *et al.* (Pasqualini *et al.*, 2007) ont mis au point un dispositif expérimental strict permettant d'atteindre une stabilité de la fréquence de résonance de l'ordre de $\pm 0.1\text{Hz}$ en limitant les fluctuations thermiques à

10°mK sur la durée totale de l'expérience. Ces conditions extrêmes ne peuvent pas être obtenues avec notre matériel et le dispositif de régulation de la température associé. En effet, nous avons pu observer des variations de l'ordre de $\pm 0.5^\circ\text{C}$ au cours d'une acquisition NRUS complète (Fig.5a). Dans ces conditions, le décalage fréquentiel ainsi que la variation de l'atténuation ne peuvent pas être attribuées uniquement à l'élasticité non-linéaire hystérétique du matériau mais sont liées aussi aux variations des conditions externes (ici la température) qui conduisent à modifier la fréquence de résonance et l'atténuation du matériau. De plus, les variations de fréquence et d'atténuation induites par les variations de température peuvent être du même ordre de grandeur que celles causées par les non-linéarités élastiques intrinsèques du matériau (Fig.6). Afin de s'affranchir de ce problème, nous avons adopté une approche inspirée par les travaux de Pasqualini *et al.* (Pasqualini *et al.*, 2007).

La courbe de résonance de référence initiale est obtenue au plus faible niveau de déformation. Le niveau d'excitation est ensuite augmenté pour passer à l'étape suivante. Ce qui diffère du protocole standard (Fig.4a), c'est l'acquisition d'une nouvelle courbe de résonance de référence, toujours au plus faible niveau de déformation, avant chaque passage au niveau d'excitation suivant. Ainsi, nous obtenons à la fin de l'expérience, n courbes de résonance de référence (soit $f_{0,n}$ et $Q_{0,n}^{-1}$) correspondant aux n niveaux d'excitation du protocole de mesure (soit f_n et Q_n^{-1}) (Fig.4b).

Si l'échantillon reste dans le même état d'équilibre pendant toute la durée de l'expérience (pas de changement de température), les différentes courbes de résonance obtenues au plus faible niveau d'excitation doivent toutes se superposer à la courbe de résonance de référence initialement mesurée. Par contre si la température change, les pics de résonance $f_{0,n}$ changent et se décalent vers les hautes ou basses fréquences suivant si la température diminue ou augmente. Un exemple est présenté Fig.5 dans le cas d'un échantillon d'os pour lequel la mesure NRUS a été répétée deux fois et au cours de laquelle la température a varié de -0.7°C et $+0.2^\circ\text{C}$. Les variations de la fréquence de résonance $f_{0,n}$ reflètent les variations de température, indiquant que la température est en fait la principale source de ces variations (Fig.5b). La température affecte aussi les décalages fréquentiels des pics de résonance f_n obtenus aux niveaux de déformation plus élevés, masquant les variations liées à la nature intrinsèque non-linéaire du matériau (Fig.6a). Il faut noter que si le phénomène de dynamique lente était à l'origine des variations observées, ces variations devraient être reproductibles, ce qui n'est manifestement pas le cas ici (Fig.5b). Cela prouve en outre que la durée d'excitation limitée à 1s ainsi que le délai de 3s entre chaque excitation

sont suffisants pour s'affranchir de tout conditionnement des matériaux considérés dans cette étude.

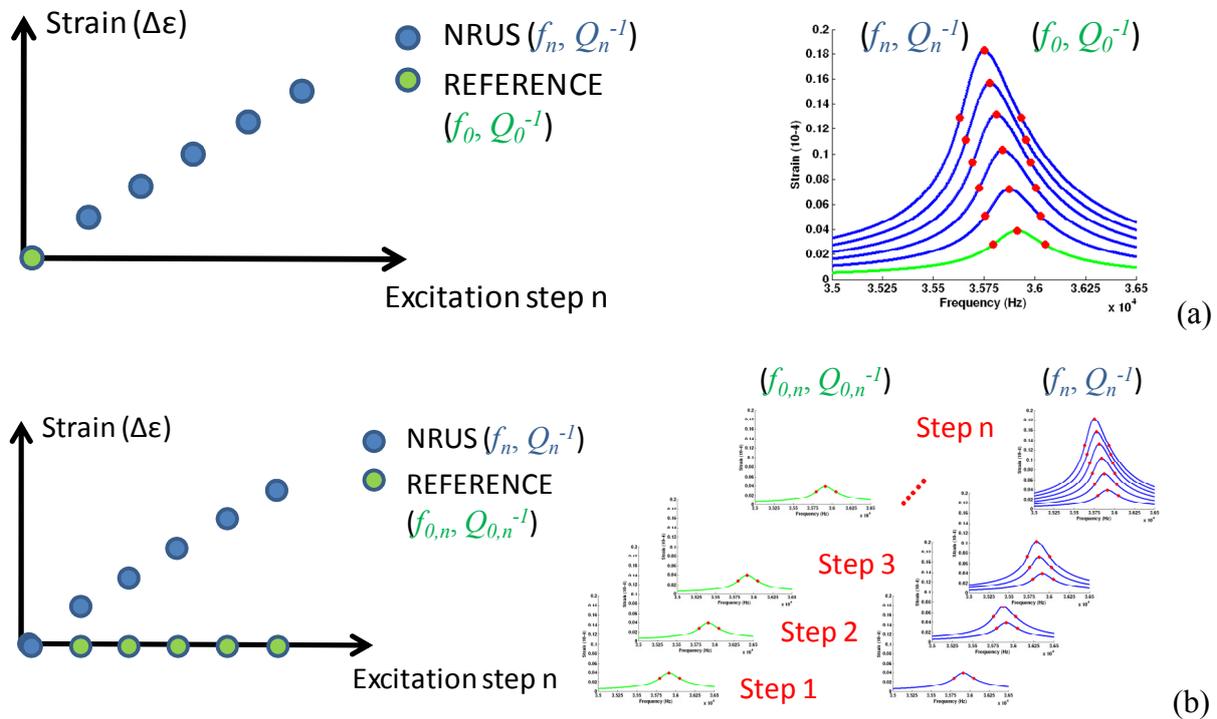


Figure 4 : Diagramme représentant les étapes du protocole NRUS standard (a) et celles du protocole NRUS optimisé, présenté dans ce chapitre. Notons que les valeurs de référence de la fréquence de résonance ($f_{0,n}$) et de l'atténuation ($Q_{0,n}^{-1}$) sont mesurées avant chaque étape NRUS dans le protocole NRUS optimisé.

Ces observations, nous montrent que l'extraction des paramètres non linéaires hystériques α_f et α_Q à partir des Eqs. (2.9) et (2.10) (définies dans le chapitre 2) basées uniquement sur les valeurs initiales f_0 et Q_0^{-1} , mènerait à des résultats erronés. Or, il est possible de corriger ces erreurs en utilisant toutes les courbes de résonance de référence ($f_{0,n}$ et $Q_{0,n}^{-1}$) acquises au cours de la mesure NRUS. En effet à chaque niveau d'excitation, les variations de f et de Q^{-1} peuvent être calculées à partir des dernières valeurs de référence $f_{0,n}$ et $Q_{0,n}^{-1}$ mesurées, celle-ci reflétant les conditions environnementales (la température) présentes au moment de l'acquisition de la courbe de résonance de l'étape n . Un exemple illustrant l'efficacité de la correction est présentée sur la Fig.6 pour un échantillon d'os bovin (ce sont les mêmes données que celles de la Fig.5). Tandis que les variations du décalage en fréquence **non corrigé** en fonction du niveau de déformation (Fig.6a) reflètent les changements de température, nous avons trouvé une relation linéaire et reproductible entre le décalage en fréquence **corrigé** et le niveau de déformation ainsi que le prédit la théorie pour un matériau ayant une non-linéarité élastique hystérique quadratique (Eq. 2.8). Ce résultat suggère que la

procédure de correction de l'effet de température est efficace. La mesure des propriétés non-linéaires intrinsèques des matériaux devient dès lors possible. La température semble avoir moins d'influence sur le facteur d'atténuation que la fréquence de résonance (données non présentées). La correction proposée a été appliquée à tous les échantillons de cette étude.

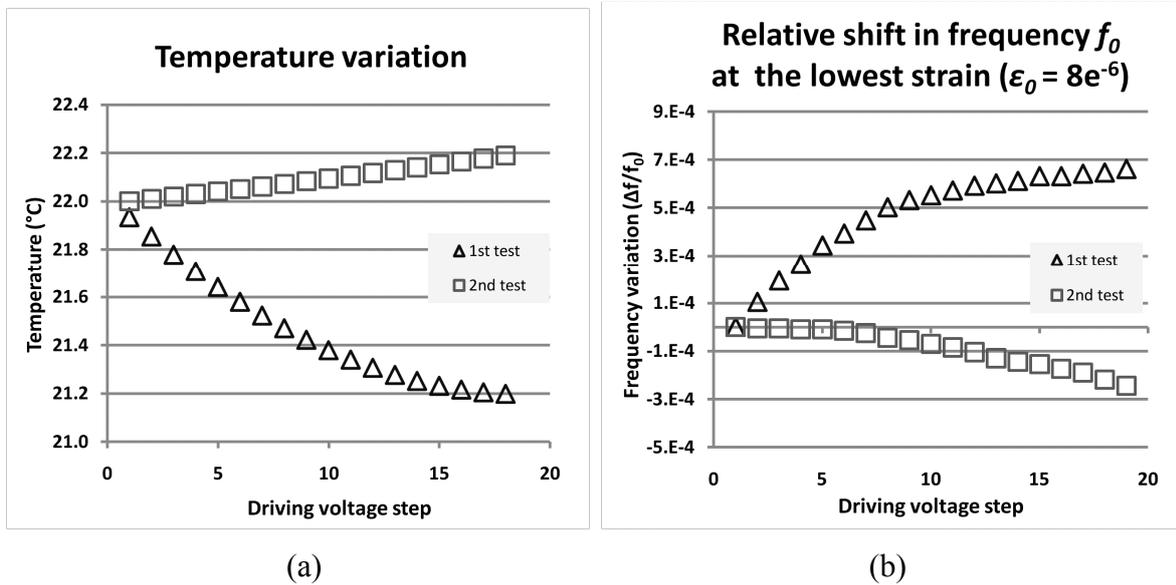


Figure 5 : Echantillon d'os bovin, 1er mode de compression. (a) Variations de température enregistrée à la surface de l'échantillon pendant deux expériences NRUS différentes. (b) Décalage en fréquence $f_{0,n}$ (plus faible niveau d'excitation) reflétant la variation de température.

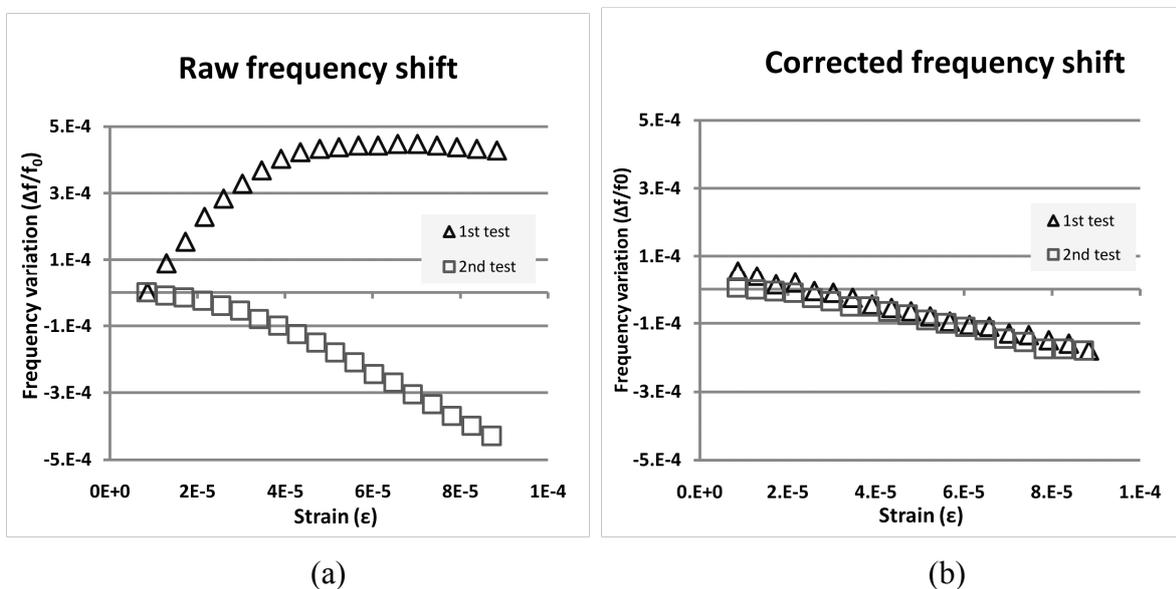


Figure x6 : Echantillon d'os bovin, 1er mode de compression. (a) Variations de la fréquence de résonance calculées à partir de l'Eq. (2.9) mesurées pour deux expériences NRUS différentes. (b) Variations de la fréquence de résonance corrigée calculées à partir de l'Eq. (2.9) où f_0 a été remplacée par $f_{0,n}$. Les effets de la température, s'ils ne sont pas corrigés, surpassent les variations de fréquence liées à la non-linéarité hystérique intrinsèque de l'os cortical bovin.

Dans le paragraphe suivant, nous détaillerons les résultats obtenus pour tous les matériaux. La répétabilité est évaluée à l'aide du coefficient de variation $CV\% = SD/\mu$, où SD et μ sont l'écart type et la valeur moyenne obtenues à partir de trois mesures répétées avec repositionnement du même échantillon. Le coefficient de variation d'un matériau correspond à la moyenne des coefficients CV obtenus pour tous les échantillons d'un même type de matériau.

4.2 Résultats

L'analyse des données est réalisée à partir des courbes de résonance obtenues pour différents niveaux de déformation successifs et pour les trois premiers modes de chaque échantillon (Fig.7). La Fig.8 montre le décalage en fréquence et la variation de l'atténuation corrigés pour tous les matériaux testés (second mode de compression). L'absence de variation des polymères (PVC et PMMA), même pour des niveaux de déformation très élevés, confirment que notre dispositif expérimental est linéaire. Pour tous les autres matériaux (travertin, craie, os bovin, acier inox, aluminium et laiton), une dépendance quasi-linéaire a été trouvée pour la fréquence de résonance par le facteur d'atténuation.

La Table I présente les coefficients de variation des paramètres α_f et α_Q corrigés et non corrigés. Grâce à la correction, les coefficients de variation sont très nettement réduits, en particulier pour les trois matériaux les moins non-linéaires que sont l'os cortical, l'aluminium et le laiton. C'est en particulier le cas pour les échantillons d'os pour lesquels le CV passe de 201.9% avant correction à 16.2% après correction des données. Sans correction, le comportement faiblement non-linéaire intrinsèque de ces matériaux, masqué par l'effet de la température, n'aurait pas pu être observé. Par contre, les CVs des trois matériaux les plus non-linéaires (acier inox, travertin et craie) ont peu ou pas évolués avec la correction. Nous pouvons remarquer que la réduction des CVs est plus importante pour α_f que pour α_Q , suggérant que la fréquence de résonance est plus sensible aux variations de température que l'atténuation. Pour résumer, nos résultats montrent que la procédure de correction des données est un élément essentiel si nous voulons augmenter de manière significative la sensibilité des mesures NRUS. Cette correction s'avère particulièrement indispensable pour extraire les propriétés non linéaires élastiques d'un matériau très faiblement non linéaire.

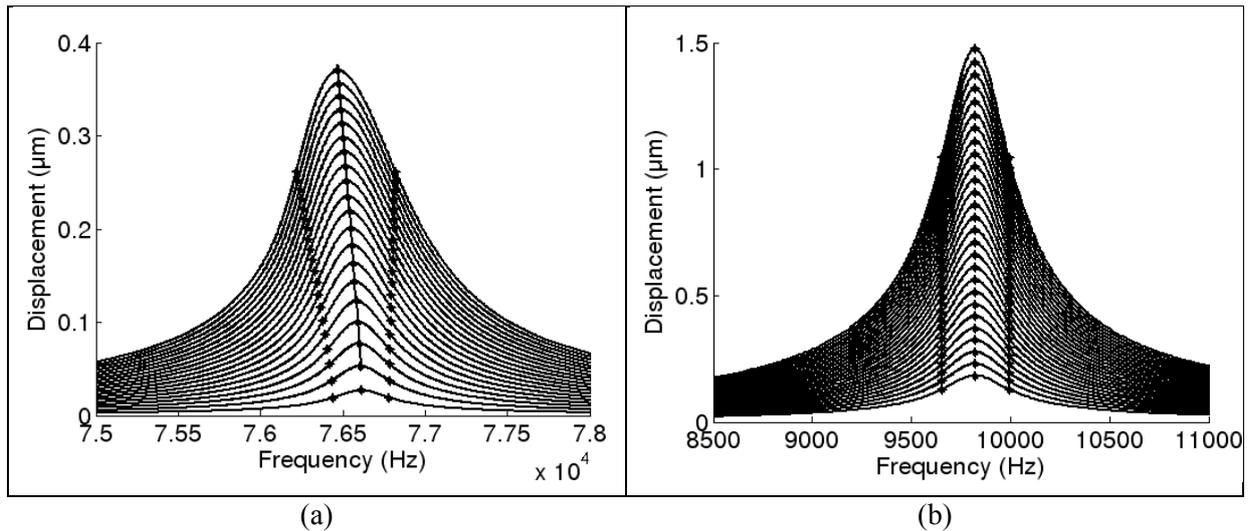


Figure 7: Courbes de résonance (a) d'un échantillon d'acier inox (2nd mode) et (b) d'un échantillon de PMMA (1^{er} mode). Le décalage en fréquence n'est visible que dans le cas de l'acier inox.

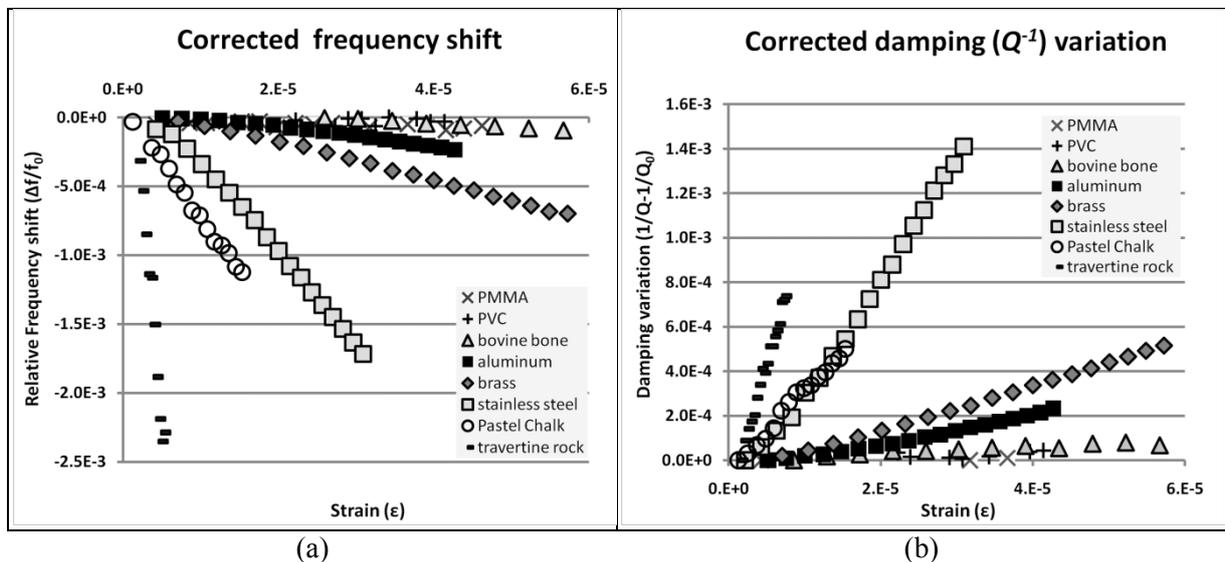


Figure 8: Dépendance entre la fréquence (a) ou l'atténuation (b) et le niveau de déformation pour tous les matériaux testés (Ne sont représentés que les résultats du second mode de compression pour un seul échantillon de chaque matériau).

	<i>Variabilité de α_f (CV)</i>		<i>Variabilité de α_Q (CV)</i>	
	<i>Non corrigé</i>	<i>corrigé</i>	<i>Non corrigé</i>	<i>corrigé</i>
Os cortical bovin	201.9%	16.2%	19.5%	14.2%
Aluminium	30.8%	6.2%	5.8%	4.2%
Laiton	13.6%	6.9%	7.0%	6.5%
Acier inox	5.4%	4.9%	4.8%	3.6%
Craie	5.1%	3.1%	7.0%	7.3%
Travertin	7.1%	7.0%	13.4%	21.7%

Table I. Coefficient de variation (CV) moyen des paramètres non-linéaires (α_f , α_Q) avant et après correction. (Pas de données pour le PMMA et le PVC car ils sont linéaires)

Les valeurs moyennes de α_f et α_Q des trois premiers modes de compression sont synthétisés dans les Tables II et III. Les propriétés non-linéaires de l'os cortical bovin sec, de l'aluminium et du laiton sont faibles ($\alpha_f = -5.0.2$ to -29.9 and $\alpha_Q = 2.1$ to 22.6). Les valeurs sont un ordre de grandeur plus grande pour l'acier inox 304 ($\alpha_f > -113$ and $\alpha_Q > 90.6$) et la craie ($\alpha_f = -39.3$ to -256.1 and $\alpha_Q = 13.5$ to 80.4), tandis que le travertin (une roche majoritairement constituée de précipités de carbonate de calcium) est le plus non linéaire des matériaux testés ($\alpha_f = -1238$ to -1401 and $\alpha_Q = 192$ to 228). L'os cortical bovin possède les valeurs les plus faibles, avec un paramètre non linéaire hystérétique élastique α_f compris entre -5.0 et -6.9 et un paramètre non linéaire hystérétique dissipatif α_Q compris entre 2.1 et 3.6 . Il faut noter que les valeurs de α_f et α_Q n'ont pas pu être mesurées pour le premier mode de compression du laiton et de l'acier inox à cause du recouvrement de plusieurs pics de résonances dans la gamme de fréquence utile.

	α_f mode 1	α_f mode 2	α_f mode 3
Os cortical bovin	-5.0 ± 2.5	-5.1 ± 0.3	-6.9 ± 0.6
Aluminium	-12.2 ± 2.2	-16.3 ± 0.4	-19.5 ± 1.5
Laiton	-	-27.3 ± 3.2	-29.9 ± 1.2
Acier inox	-	-120.0 ± 9.6	-113.9 ± 11.6
Craie	-39.3 ± 1.4	-157 ± 6.8	-256.1 ± 6.2
Travertin	-1377.8 ± 71.7	-1401.2 ± 141.6	-1238.6 ± 72.2

Table II. Paramètre élastique hystérétique moyen (α_f)

	α_Q mode 1	α_Q mode 2	α_Q mode 3
Os cortical bovin	3.6 ± 2.5	2.1 ± 0.3	2.7 ± 0.6
Aluminium	8 ± 2.2	13.6 ± 0.4	16.9 ± 1.5
Laiton	-	18.9 ± 3.2	22.6 ± 1.2
Acier inox	-	98.2 ± 9.6	90.6 ± 11.6
Craie	13.5 ± 0.5	80.4 ± 11.1	74.5 ± 2.6
Travertin	192.9 ± 49.8	228.3 ± 46.5	204.3 ± 38.6

Table III. Paramètre dissipatif hystérétique moyen (α_Q)

Enfin, comme les deux paramètres non-linéaires associés au module élastique complexe ont été mesurées dans cette étude, il est possible de calculer le rapport de Read qui est proportionnel au rapport de ces deux paramètres : $\pi |\alpha_Q / 2 \alpha_f|$ (Table IV). Sa valeur est proche de $4/3$ pour les échantillons métalliques comme le prédit la théorie dans le cas d'une non-linéarité hystérétique quadratique (voir paragraphe 2.2.2). Pour les autres matériaux (os bovin et roches (craie, travertin), les valeurs sont plus faibles, signifiant que la non linéarité

dissipative est relativement plus faible que la non linéarité élastique. De plus, les valeurs du ratio de Read ne sont pas constantes mais varient suivant le mode.

	<i>Ratio de Read : $\pi \alpha_Q/2\alpha_f$</i>		
	mode 1	mode 2	mode 3
Os cortical bovin	1.13	0.64	0.63
Aluminium	1.03	1.31	1.36
Laiton	-	1.27	1.19
Acier inox	-	1.28	1.25
Craie	0.54	0.80	1.03
travertin	0.22	0.25	0.26

Table IV. Ratio de Read moyen ($\pi|\alpha_Q/2\alpha_f|$) calculé pour les trois modes de compression de chaque type de matériau.

4.3 Discussion

Pour la première fois, la dépendance en amplitude de la fréquence de résonance (α_f) et de la dissipation (α_Q) ont été mesurées très précisément en compensant rigoureusement les effets thermiques. Nous avons pu ainsi extraire les signatures associées au comportement non-linéaire hystérétique de différents types de matériaux dont on suppose qu'il est lié à la présence de défauts « mous » [en anglais « *soft defect* »]. Cependant, nos résultats doivent être interprétés avec précaution car d'autres mécanismes non-hystérétiques comme la thermo-élasticité ou les pertes visqueuses qui se traduisent par des processus de relaxation (Zaitsev and Sas, 2000; Fillinger *et al.*, 2006; Zaitsev and Matveev, 2006) peuvent avoir lieu simultanément et produire une dépendance en amplitude de l'élasticité et de l'atténuation très similaire au phénomène purement hystérétique.

Dans cette étude, nous observons une dépendance en amplitude linéaire du module élastique et de l'atténuation pour tous les matériaux mesurés, ainsi que le prédit la loi de comportement des matériaux non-linéaires hystérétiques quadratiques. Cependant, compte tenu de la faible étendue de l'amplitude d'excitation (un ordre de grandeur seulement), nos données peuvent être interpolées avec une bonne précision, aussi bien par une interpolation linéaire qu'avec une loi de puissance. Il n'est donc pas possible d'affirmer avec certitude que la dépendance en amplitude de nos données soit strictement linéaire (loi de comportement purement hystérétique quadratique) ou non-linéaire (loi de comportement hystérétique non (uniquement) quadratique). Pour lever l'ambiguïté, il serait nécessaire d'étendre la plage de déformation auxquelles les échantillons sont soumis. La relation de dépendance en amplitude peut dévier d'une loi linéaire à cause (1) d'une dépendance en amplitude combinant des non-

linéarités classiques cubiques d'origine atomique avec des non-linéarités hystérétiques quadratiques (Pasqualini *et al.*, 2007), ou (2) d'un comportement hystérétique non quadratique (Lebedev, 1999).

Les valeurs moyennes de α_f et α_Q sont similaires pour les trois modes mesurés dans l'os bovin, l'aluminium, le laiton, l'acier inox et le travertin (Table III), ce qui indique une non-linéarité quasi indépendante de la fréquence. Les faibles écarts observés entre les différents modes sont principalement dus à des erreurs de mesure. Ils peuvent être aussi attribués à une contribution différente des modes à cause d'une distribution spatiale inhomogène des défauts mous dans les échantillons (Van Den Abeele, 2007). Enfin, il a été démontré que l'amplitude de déformation modale peut expliquer une variation non négligeable de α_f et α_Q (au maximum de l'ordre de 20% (Van Den Abeele, 2007) suivant le mode excité (voir partie 3.1.4)). Dans le cas particulier de la craie, les paramètres non-linéaires du mode 1 sont très différents des modes 2 et 3 (Table III) et la distribution spatiale des nœuds et anti-nœuds n'est pas suffisante pour expliquer l'augmentation de α_f et α_Q avec la fréquence de résonance. Pour tenter d'expliquer ces observations, il faut prendre en compte d'autres phénomènes se produisant en même temps que les phénomènes d'élasticité non-linéaire. En effet, en plus de la **dépendance en amplitude** de l'atténuation, la viscoélasticité des défauts mous peut conduire à une **dépendance en fréquence** des propriétés non-linéaires (Zaitsev and Sas, 2000; Zaitsev and Matveev, 2012)(voir partie 2.3.3). Dans le cas de la craie, la grande variabilité intermodale des paramètres non-linéaire peut provenir de ce type de mécanisme non-hystérétique, entrant en concurrence avec le comportement strictement hystérétique intrinsèque du matériau. La séparation des contributions respectives de ces deux mécanismes (hystérétique et non-hystérétique) requiert des expériences complémentaires, par exemple en déterminant les pics d'atténuation des matériaux (pic de Debye) afin de se placer sur d'autres plages de fréquence.

Lorsque nous comparons le ratio de Read ($\pi\alpha_Q/2\alpha_f$) pour les différents matériaux mesurés, leurs valeurs diffèrent d'un facteur 5. Le ratio de Read des métaux polycristallins (aluminium, laiton et acier inox) est proche de 4/3, la valeur théorique attendue pour un comportement purement élastique hystérétique quadratique mesuré en quasi-statique (voir partie 2.2.2). Cela suggère que le comportement non-hystérétique d'origine viscoélastique mentionné dans le paragraphe précédent n'a pas d'effet significatif sur l'évaluation de l'élasticité non-linéaire des échantillons métalliques de cette étude. Pour les autres matériaux

(os cortical, craie et roche travertine) le rapport de Read est différent, avec des valeurs largement inférieures à $4/3$ (0.25 pour le travertin), et ceci malgré une dépendance en amplitude linéaire avec la fréquence de résonance et l'atténuation. Pour interpréter les résultats, il faut envisager d'autres mécanismes, comme la viscosité particulière des défauts mous qui agirait différemment sur les propriétés non-linéaires élastique et dissipative globales du matériau, induisant une modification de leur rapport, et ce d'autant plus que la viscosité joue un rôle important dans le matériau. Cela expliquerait les différentes valeurs de rapport de Read obtenus pour l'os, la craie et le travertin. Enfin, les variations du rapport de Read peuvent être biaisées par la façon de déterminer le paramètre dissipatif α_Q , en particulier lorsque la non-linéarité dissipative devient très grande et que la symétrie du pic de résonance est insuffisante. Dans cette situation, une autre méthode est généralement préconisée. Elle est basée sur une approximation prenant en compte uniquement la variation d'amplitude du pic de résonance (Nazarov, 1991; Johnson and Sutin, 2005; Rivière *et al.*, 2010). Or si cette méthode donne des résultats comparables à celle utilisée dans cette étude pour les matériaux métalliques ou les roches, elle donne aussi des résultats très différents pour l'os et les plastiques. En effet, nous avons mesuré des valeurs négatives d' α_Q pour l'os bovin mais aussi pour les matériaux linéaires (PMMA et PVC). Or les modèles non-linéaires hystérétiques tels que le *PM-Space* ne prévoient pas de valeurs négatives pour α_Q . Nous pensons donc qu'il est préférable d'utiliser la méthode basée sur le facteur de qualité Q pour les matériaux faiblement non-linéaires hystérétique.

Les valeurs moyennes de α_f et α_Q des géo-matériaux sont en accord avec celles rapportées dans la littérature (Johnson and Sutin, 2005). En ce qui concerne les métaux polycristallins, de nombreux résultats ont été décrits dans la littérature sur des métaux polycristallins tels que le zinc, le cuivre et les alliages de cuivre (voir le paragraphe 2.1.2). Par contre, le comportement hystérétique élastique de l'acier inox, de l'aluminium et du laiton ont plus rarement été observés [laiton (Jon *et al.*, 1976); aluminium (Mason, 1956; Chambers and Smoluchowski, 1960); acier (Masumoto *et al.*, 1979)]. Si nous comparons nos résultats dans l'aluminium à ceux de Mason (Fig.8 de l'article de Mason (Mason, 1956)), nous trouvons des variations similaires de Q^{-1} entre 10^{-5} et $5 \cdot 10^{-5}$ entre l'alliage d'aluminium 17ST4 et notre alliage d'aluminium AU4G.

Nos résultats peuvent être affectés par la présence de micro-endommagement induit par la préparation des échantillons (la découpe) ainsi qu'au cours du traitement thermique (le

recuit, la trempe...) associés à la production des plaques métalliques. Pour évaluer la part des non-linéarités liées à la présence de micro-endommagement, nous avons fait des mesures complémentaires sur un autre échantillon d'acier inox 304. Cet échantillon n'a pas subi la même préparation (aucune découpe n'a été effectuée, à part aux deux extrémités). De plus, il est plus grand (200mm de long), de forme différente (cylindre) avec une fréquence de résonance beaucoup plus basse (6kHz). Malgré la différence de forme, de volume, de fréquence et de préparation, les valeurs moyennes de α_f et α_Q obtenus pour cet échantillon sont similaires à celles obtenues pour les petits échantillons parallélépipédiques. Par conséquent, il semble que nous ayons bien mesuré les propriétés élastiques hystérétiques intrinsèques de l'acier inox 304 sur nos petits échantillons. Ce résultat est remarquable car il suggère qu'en s'affranchissant des variations des facteurs environnementaux comme la température, il devient possible d'extraire des propriétés non-linéarités non classiques faibles dans des matériaux généralement considérés comme strictement classiques, c'est-à-dire suivant le modèle de Landau.

4.4 Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons présenté une nouvelle procédure de correction des données issues de mesures NRUS obtenues sur des petits échantillons. Cette procédure consiste à capturer la courbe de résonance de référence avant chaque niveau d'excitation, permettant de calculer la variation de la fréquence et de l'atténuation avec l'état de référence correspondant au niveau d'excitation en cours. Nos résultats ont montré que la procédure de correction peut être une alternative efficace au contrôle drastique des conditions environnementales pendant l'expérience (contrôle en température et en humidité). En effet, cette procédure simple à mettre en œuvre permet d'augmenter significativement la précision et la sensibilité des mesures NRUS. Ainsi, nous avons pu mesurer des décalages en fréquence de l'ordre de 10^{-5} , inférieurs au seuil de 10^{-4} , souvent considéré comme la limite de sensibilité de la technique NRUS dans des conditions expérimentales habituelles. L'amélioration de la sensibilité devrait permettre l'extraction de la faible contribution non-linéaire non classique des défauts mous (microfissures, joints de grain, dislocations) contenus dans des matériaux comme l'os cortical, ou de suivre de légers changements des propriétés d'élasticité non-linéaire induits par l'accumulation de micro-endommagement (survenant lors d'endommagement progressif).

Dans cette expérience, nous avons identifié que la fluctuation de la température externe est la principale source de variation de la fréquence de résonance. Une variation de 0.1°C à la surface d'un échantillon d'os cortical peut causer une variation de la fréquence de 0.01% . Or cette variation est du même ordre de grandeur que le décalage fréquentiel attendu pour un matériau faiblement non-linéaire non classique. En l'absence de correction, il aurait été impossible d'extraire les propriétés non-linéaires non classiques intrinsèques de l'os cortical. En plus de la température, d'autres facteurs peuvent affecter la réponse élastique d'un matériau et entrer en compétition avec les non-linéarités intrinsèques du matériau. Ces facteurs peuvent être d'origine environnementale (l'humidité et la pression) ou bien liées aux effets de conditionnement et de relaxation lente du matériau au cours de l'expérience (TenCate *et al.*, 2004; Tencate, 2011). L'avantage de notre procédure de correction est (1) qu'elle ne nous oblige pas à tenir compte des variations de la courbe de la fréquence de résonance (f_0 et Q_0), quelle que soit l'origine de ses variations, mais aussi (2) qu'elle corrige automatiquement ces différences, sauf si les variations sont suffisamment importantes et rapides pour changer le comportement non-linéaire du matériau pendant la mesure (Van Den Abeele *et al.*, 2002; Scalerandi *et al.*, 2010). Par contre, la procédure de correction des données ne permet pas de séparer la contribution des mécanismes non-hystérétiques de type visqueux et/ou thermo-élastique de la contribution des véritables mécanismes hystérétiques, les deux phénomènes entrant en compétition durant les mesures NRUS. Pour identifier et mesurer les contributions non-hystérétiques et les contributions non-linéaires élastiques hystérétiques, il serait intéressant de travailler à des fréquences non-affectées par la dépendance en fréquence de l'atténuation ou bien travailler sur différents modes couvrant la bande passante la plus large possible afin d'obtenir une tendance moyenne.

Pour finir, ce chapitre nous a donné l'occasion de rapporter les valeurs intrinsèques des paramètres non-linéaires non classiques de différentes classes de matériau (os, métaux polycristallins et roches). Ainsi, grâce à notre procédure de correction des données, nous avons pu mettre en lumière des propriétés non-linéaires non classiques dans des matériaux (acier inox, laiton et aluminium) considérés généralement par la communauté des chercheurs travaillant sur les roches et les matériaux endommagés comme ayant un comportement strictement non-linéaire classique de type Landau. Le paradigme de la non-linéarité hystérétique pourrait donc s'étendre à beaucoup plus de matériaux que ce que nous pensions jusqu'à présent.

Bibliographie

- Chambers, R., and Smoluchowski, R. (1960). "Time-dependent internal friction in aluminum and magnesium single crystals," *Physical Review* **117**, 725.
- Fillinger, L., Zaitsev, V. Y., Gusev, V., and Castagnede, B. (2006). "Nonlinear relaxational absorption/transparency for acoustic waves due to thermoelastic effect," *Acta acustica united with acustica* **92**, 24-34.
- Johnson, P., and Sutin, A. (2005). "Slow dynamics and anomalous nonlinear fast dynamics in diverse solids," *Journal of the Acoustical Society of America* **117**, 124-130.
- Johnson, P. A., Zinszner, B., Rasolofosaon, P., Cohen-Tenoudji, F., and Van Den Abeele, K. (2004). "Dynamic measurements of the nonlinear elastic parameter alpha in rock under varying conditions," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **109**.
- Jon, M., Mason, W., and Beshers, D. (1976). "Internal friction during ultrasonic deformation of alpha brass," *Journal of Applied Physics* **47**, 2337-2349.
- Lebedev, A. B. (1999). "Amplitude-dependent elastic-modulus defect in the main dislocation-hysteresis models," *Physics of the Solid State* **41**, 1105-1111.
- Mason, W. (1956). "Internal friction and fatigue in metals at large strain amplitudes," *The Journal of the Acoustical Society of America* **28**, 1207.
- Masumoto, H., Sawaya, S., and Hinai, M. (1979). "On the damping capacity of Fe-Cr alloys," *Trans. JIM* **20**, 409-413.
- Nazarov, V. Y. (1991). "Copper structure influence on its acoustical nonlinearity," *Fizika Metallov I Metallovedenie*, 172-178.
- Pasqualini, D., Heitmann, K., TenCate, J. A., Habib, S., Higdon, D., and Johnson, P. A. (2007). "Nonequilibrium and nonlinear dynamics in Berea and Fontainebleau sandstones: Low-strain regime," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **112**.
- Rivière, J., Renaud, G., Hauptert, S., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. (2010). "Nonlinear acoustic resonances to probe a threaded interface," *Journal of Applied Physics* **107**, 4901.
- Scalerandi, M., Gliozzi, A., Bruno, C., and Antonaci, P. (2010). "Nonequilibrium and hysteresis in solids: Disentangling conditioning from nonlinear elasticity," *Physical Review B* **81**, 104114.
- Tencate, J. A. (2011). "Slow Dynamics of Earth Materials: An Experimental Overview," *Pure and Applied Geophysics*, 1-9.
- TenCate, J. A., Pasqualini, D., Habib, S., Heitmann, K., Higdon, D., and Johnson, P. A. (2004). "Nonlinear and nonequilibrium dynamics in geomaterials," *Physical Review Letters* **93**.
- Van Den Abeele, K. (2007). "Multi-mode nonlinear resonance ultrasound spectroscopy for defect imaging: An analytical approach for the one-dimensional case," *Journal of the Acoustical Society of America* **122**, 73-90.
- Van Den Abeele, K. E. A., Carmeliet, J., Johnson, P., and Zinszner, B. (2002). "Influence of water saturation on the nonlinear elastic mesoscopic response in Earth materials and the implications to the mechanism of nonlinearity," *Journal of Geophysical Research (Solid Earth)* **107**, 2121.
- Zaitsev, V. Y., and Matveev, L. (2006). "Microinhomogeneous medium, elastic nonlinearity, linear dissipation, amplitude dependent dissipation," *Russian Geology and Geophysics* **47**, 694-709.
- Zaitsev, V. Y., and Matveev, L. A. (2012). *Giant strain-sensitivity of acoustic energy dissipation in solids containing dry and saturated cracks with wavy interfaces.*

Zaitsev, V. Y., and Sas, P. (2000). "Dissipation in microinhomogeneous solids: inherent amplitude-dependent attenuation of a non-hysteretical and non-frictional type," *Acustica-Acta Acustica* **86**, 429-445.

Chapitre 5.

EVALUATION DE L'ACCUMULATION DU MICRO-ENDOMMAGEMENT OSSEUX PAR SPECTROSCOPIE ULTRASONORE NON-LINEAIRE

Les précédentes études non-linéaires menées au Laboratoire d'Imagerie Paramétrique (LIP) ont été réalisées sur des diaphyses humaines et bovines, c'est-à-dire sur des échantillons d'os cortical non calibrés et de grande taille (plusieurs centimètres). Les paramètres d'acoustique non-linéaire ont été obtenus par deux types de mesure, (1) la résonance non-linéaire (NRUS) (Muller *et al.*, 2005; Muller *et al.*, 2006; Muller *et al.*, 2008) et (2) le mélange de fréquences (NWMS) (Ulrich *et al.*, 2007). Dans toutes ces études, le paramètre non-linéaire augmente après le cyclage des diaphyses. En revanche, la présence d'endommagement à la fin de la fatigue n'a pas été objectivée. En effet, ces études n'ont pas été validées par une analyse quantitative de l'endommagement osseux en histomorphométrie (technique de référence) ou en imagerie par rayonnement synchrotron. Les relations fonctionnelles entre les caractéristiques du micro-endommagement osseux et les propriétés non-linéaires acoustiques de l'os cortical restent à établir.

Dans ce chapitre, nous nous attacherons à établir un lien opérationnel entre un paramètre acoustique non-linéaire (le paramètre non-linéaire élastique non classique α_f) et les caractéristiques du micro-endommagement osseux (densité de microfissures ou longueur moyenne des microfissures). Pour cela, nous avons travaillé sur des échantillons calibrés et de petites tailles pour (1) contrôler les zones d'endommagement induit par la fatigue, (2) contrôler les modes de résonance utilisés par la techniques non-linéaire NRUS et enfin (3) pour caractériser les microfissures sur des zones représentatives de l'endommagement natif et induit pour chaque échantillon.

Nous verrons dans ce chapitre que grâce à l'optimisation de la technique NRUS présentée dans le chapitre précédent (Chapitre 4), il est possible de suivre l'accumulation du micro-endommagement osseux dans des baguettes d'os cortical humain.

En annexe, des résultats complémentaires issus de l'expérience principale, relatifs à la biomécanique, l'acoustique non-linéaire et l'imagerie du micro-endommagement osseux seront décrits et analysés.

5.1 Matériels et méthodes

5.1.1 Préparation des échantillons et protocole de mesure

Seize échantillons d'os cortical humain ont été préparés à partir de diaphyses fémorales de quatre donneurs de sexe féminin, âgés de 88.5 ± 9.8 ans. Les fémurs ont été obtenus lors d'une collecte multi-organes. La collecte des échantillons a été approuvée par le comité éthique du Centre du Don des Corps de l'Université Paris Descartes (Paris, France). Les donneurs ou leur gardien légal ont consenti, par écrit, vouloir donner leurs organes pour la science, en accord avec les clauses établies par le code français de la santé publique. Les fémurs ont été coupés à l'aide d'une scie circulaire à lame diamantée (Isomet 4000, Buehler, GmbH, Düsseldorf, Allemagne). Les échantillons sont des baguettes calibrées de forme parallélépipédique de taille $50 \times 4 \times 2 \text{ mm}^3$. Les baguettes ont été ensuite dégraissées selon le protocole décrit par Granke (Granke *et al.*, 2011) et stockés à -20°C jusqu'au début de l'étude expérimentale.

La densité apparente des échantillons déshydratés (ρ_{dry}) a été mesurée à partir du volume et de la masse des échantillons. Les échantillons d'os sont déshydratés à 37°C pendant une nuit dans une chambre climatique (Memmert GmbH HCP 108, Schwabach, Allemagne) à une humidité relative de 15% et en présence de dessicant. La procédure de déshydratation et de réhydratation n'affecte pas les propriétés de l'os car les molécules de collagène restent intactes (Currey, 1988; Rho and Pharr, 1999).

Le protocole de mesure commence tout d'abord par l'estimation des paramètres non-linéaires initiaux de tous les échantillons secs grâce à l'optimisation de la technique NRUS (décrite dans le chapitre 4). Les baguettes d'os sont ensuite réhydratées avant de subir la première étape d'endommagement qui consiste à les fatiguer par un test de flexion 4 points. Le test sera décrit plus précisément dans la partie 5.1.3. Pendant la fatigue, des paramètres mécaniques sont évalués en temps réel afin de pouvoir stopper le cyclage lorsque le seuil de variation du paramètre mécanique est atteint pour chaque échantillon. Les mesures NRUS sont répétées après chaque session de fatigue. Au total, quatre étapes d'endommagement sont réalisées. Après chaque étape, trois baguettes sont retirées du protocole de fatigue pour

évaluer le microendommagement osseux à l'aide de l'imagerie par microtomographie haute résolution par rayonnement synchrotron (SR- μ CT) (Fig.1).

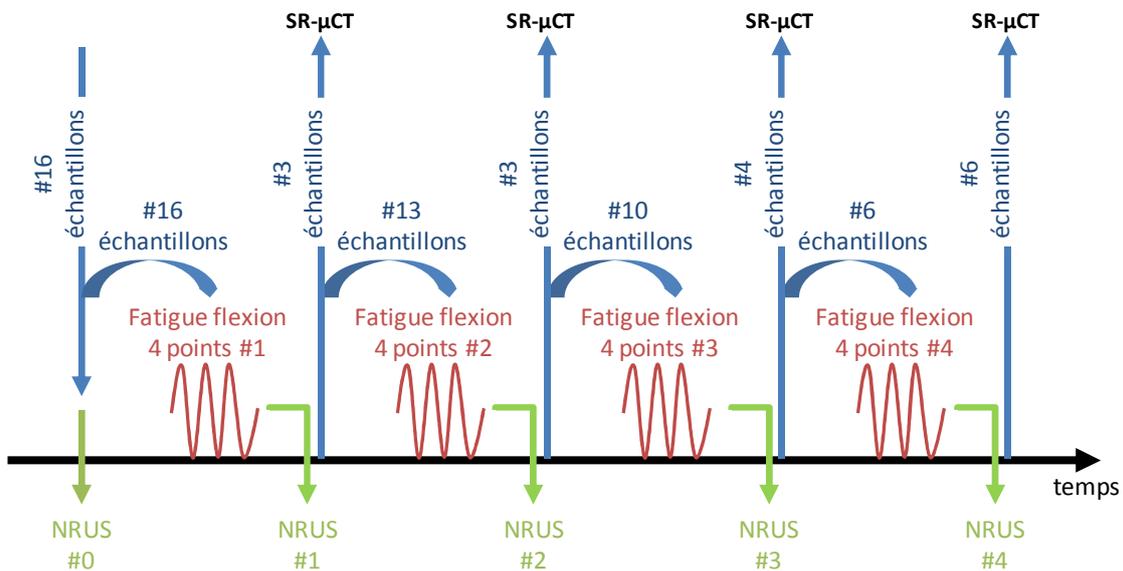


Figure 1: Diagramme illustrant le protocole de mesure de l'expérience

5.1.2 Mesures NRUS

Le contexte théorique sur lequel est basée la technique NRUS est décrit en détail dans le paragraphe 2.2.1 du chapitre 2. Nous rappellerons seulement que le paramètre non-linéaire non classique α_f est égal au coefficient de proportionnalité entre l'amplitude de déformation et la variation de la fréquence de résonance de l'échantillon (voir Eq. 2.9 du paragraphe 2.2.1).

Le principe de la mesure a été largement décrit dans le chapitre 4. Rapidement, un émetteur piézo-électrique (Fuji Ceramics Corporation, Yamamiya, Japon) associé à une masse est collé à l'extrémité de l'échantillon. La masse permet de s'assurer que les modes de vibration de la baguette sont des modes issus des conditions aux limites encastree-libre (Fig.2). Ainsi grâce à la position de l'émetteur piézo-électrique et à la forme parallélépipédique des baguettes, le premier mode de barreau est excité lors des mesures NRUS. Pendant l'expérimentation, l'acquisition des données consiste à mesurer les courbes de résonance du premier mode de barreau pour des amplitudes d'excitation croissante. La fréquence de résonance est ensuite extraite pour chaque niveau de déformation. L'amplitude de déformation dynamique maximale ε est calculée à partir du déplacement particulière longitudinal U à l'extrémité de l'échantillon à l'aide d'un vibromètre laser (LSV 1MHz, SIOS, Ilmenau, Germany) et de l'équation suivante :

$$\varepsilon = \frac{\delta U}{\delta x} = U * k = U * \frac{2\pi}{4L} \quad (5.1)$$

Où k est le nombre d'onde et L la longueur de l'échantillon.

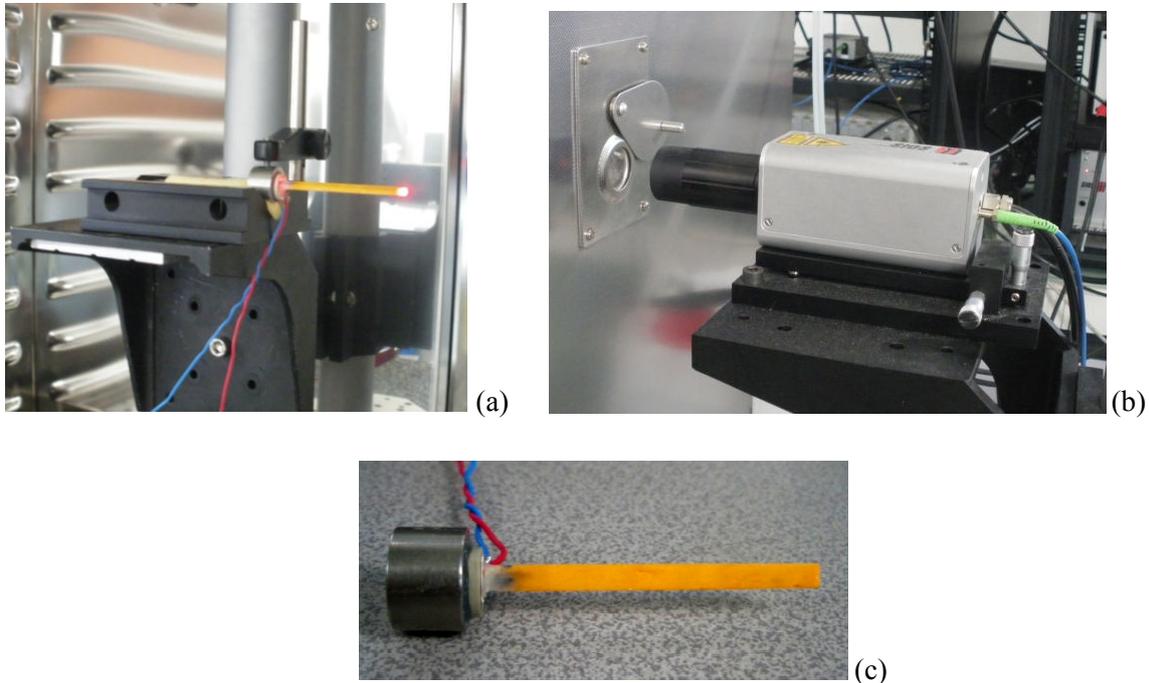


Figure 2: Dispositif expérimental: (a) Chambre climatique, (b) vibromètre laser et (c) échantillon d'os cortical humain collé sur un émetteur piézo-céramique fixé sur une masse.

Les mesures NRUS sont réalisées dans une chambre climatique qui permet de maintenir les échantillons à température constante ($37^{\circ}\text{C} \pm 0.1^{\circ}\text{C}$) et humidité relative constante ($15\% \pm 5\%$) (Fig. 2).

5.1.3 Fatigue en flexion 4 points

L'émetteur piézo-électrique attaché à l'échantillon pour les mesures NRUS est enlevé avant chaque test mécanique. Les échantillons sont réhydratés dans une solution saline pendant une nuit avant d'être immergés dans une solution saline à 37°C ($\pm 1^{\circ}\text{C}$) pour la durée de la fatigue mécanique. L'endommagement progressif est réalisé par une machine de test mécanique hydraulique (INSTRON, 8802, High Wycombe, Angleterre) associée à un dispositif de flexion 4 points, d'une cellule de charge de 1kN (précision de 0.5%) et du capteur de déplacement interne (précision de 1%). La fréquence de cyclage est de 2Hz proche des sollicitations physiologiques. Le dispositif de flexion 4 points spécialement conçu pour l'expérience est composé de quatre rouleaux en aluminium de diamètre 6.35mm écartés de

40mm pour les rouleaux extérieurs contre 20mm pour les rouleaux intérieurs. La partie supérieure du dispositif est liée à la machine par un autre rouleau permettant d'assurer une répartition la plus égale possible du chargement sur les quatre rouleaux. Tout a été fait pour minimiser l'indentation des baguettes d'os (Griffin *et al.*, 1997; ASTM, 2008) (Fig.3). Dans cette configuration, l'endommagement doit avoir lieu principalement au centre de l'échantillon, entre les deux rouleaux supérieurs (Diab and Vashishth, 2005), tandis que les deux extrémités de part et d'autre des rouleaux inférieurs doivent rester intactes. Ces deux zones intactes serviront de contrôles. Le module d'Young initial (E_{pre}) de chaque échantillon est déterminé à partir de la pente de la partie linéaire de la dernière courbe charge-déplacement obtenue à la fin d'un pré-cyclage de 20 cycles.

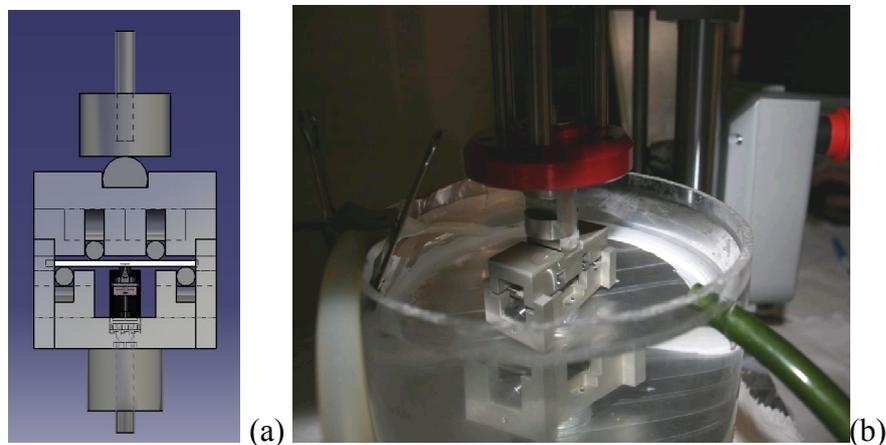


Figure 3: (a) Dispositif de flexion 4 points (b) immergé dans une solution saline à 37°C ($\pm 1^\circ\text{C}$).

A partir du module d'Young initial, la charge (F_{max}), correspondant à une déformation de $5000\mu\epsilon$ au centre des baguettes, est calculée individuellement pour chaque échantillon (Diab and Vashishth, 2005). La fatigue par flexion 4 points est ensuite appliquée entre les bornes de chargement -10N et $-F_{max}$. Pendant le cyclage, les courbes charge/déplacement sont continuellement enregistrées pour extraire le module E_{LEBT} issu de la théorie des poutres [en anglais « *Linear Elastic Beam Theory* » (LEBT)] tel que défini par Landrigan (Landrigan and Roeder, 2009). Le module E_{LEBT} correspond à une combinaison de paramètres biomécaniques élastique (le module sécant E_{sec}) et plastique (la déformation résiduelle ϵ_p) (voir Fig. 4 et annexe 3 pour une comparaison entre E_{LEBT} , E_{sec} et ϵ_p). Après chaque étape d'endommagement, le module E_{LEBT} est normalisé par la valeur initiale mesurée après le premier cycle de chargement de la première étape d'endommagement. Le module E_{LEBT} diminue quand le micro-endommagement osseux s'accumule (Boyce *et al.*, 1998; Diab and Vashishth, 2005; Landrigan and Roeder, 2009). L'endommagement progressif est réalisé

en quatre étapes (une étape = une session de cyclage), chaque étape est définie par une approche multicritères : une décroissance de 10% de E_{LEBT} ou un nombre prédéterminé de cycles (6000) ou une vitesse de réduction anormalement rapide du module E_{LEBT} . Cette approche pragmatique doit permettre d'obtenir une accumulation progressive d'endommagement en évitant la rupture des échantillons avant la fin de la quatrième étape.

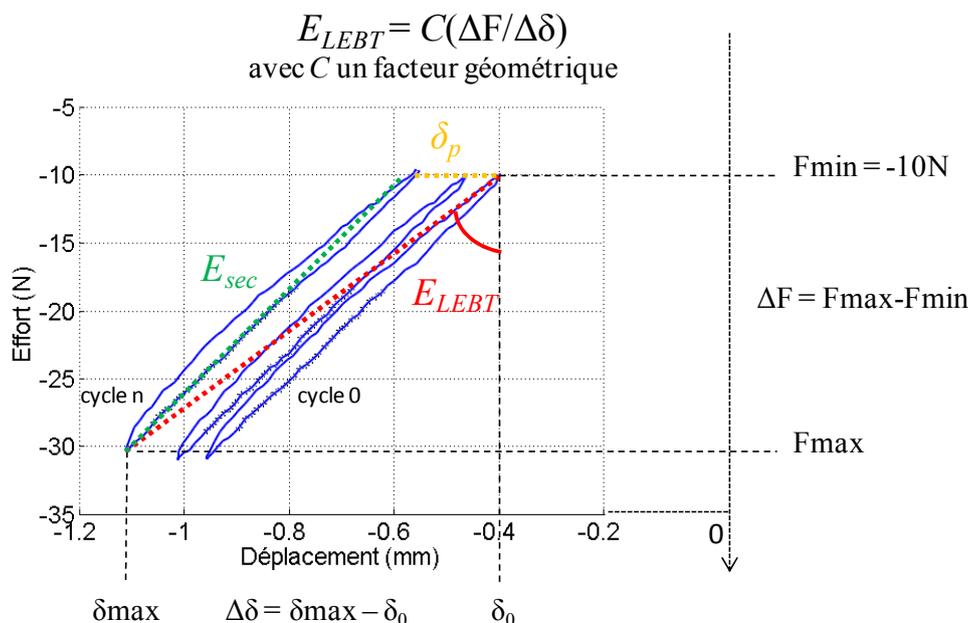


Figure 4 : Calcul du module E_{LEBT} à partir du déplacement (δ) et de l'effort appliqué (F). Le module E_{LEBT} correspond à la pente reliant le point de chargement maximale (F_{\max} ; δ_{\max}) au cours du cycle n au point de chargement minimale (F_{\min} ; δ_0) du cycle initiale (cycle 0). Le module E_{LEBT} serait similaire à E_{sec} s'il tenait compte du déplacement résiduel (δ_p) qui augmente après chaque cycle. C est une constante qui dépend des dimensions de l'échantillon et du type de chargement (flexion 4-points) (voir Annexe 2 pour plus de détails).

5.1.4 Imagerie haute résolution par rayonnement synchrotron 3-D (SR- μ CT)

A la fin de chaque cycle de fatigue, trois échantillons d'os sont retirés du protocole d'endommagement pour être imagés en 3-D à haute résolution par micro-tomographie à rayonnement synchrotron (SR- μ CT) au European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) de Grenoble (France) sur la ligne ID 19 (Larrue *et al.*, 2011). L'énergie photonique employée est de 25KeV et la taille des régions d'intérêt (ROI) est de $2.8 \times 2.8 \times 1.96 \text{ mm}^3$ avec une taille de voxel de $1.4 \mu\text{m}^3$. Deux ROI différentes ont été acquises (Fig.5) : (1) la ROI1 est localisée à l'extrémité des baguettes, dans l'une des deux zones n'ayant pas subi de chargement cyclique. Elle est donc considérée comme zone contrôle, non endommagée, mis à part l'endommagement natif présent avant les tests de fatigue ; (2) la ROI2 est localisée dans la portion centrale des échantillons où le micro-endommagement est susceptible de s'accumuler

au cours de la fatigue et de se produire avec le maximum d'intensité. Après recadrage, les volumes analysés pour les ROI1 et ROI2 ont une taille de $2.2 \times 2.2 \times 1.96 \text{ mm}^3$.

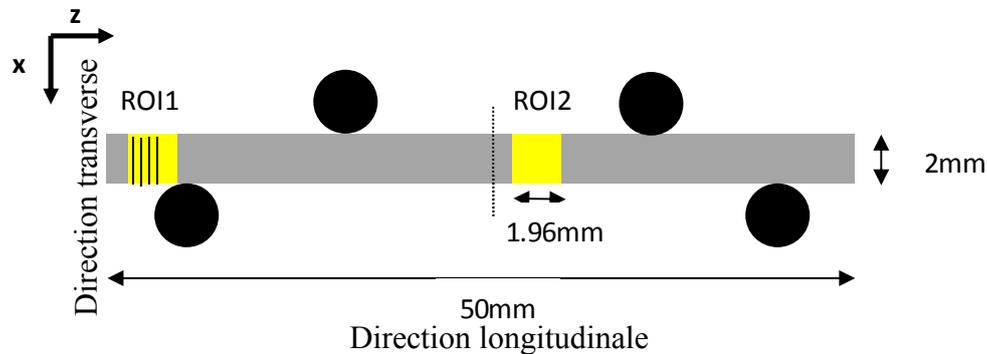


Figure 5 : Localisation des 2 régions d'intérêts (ROI) acquises par SR- μ CT.

Dans les études publiées sur l'endommagement osseux, la caractérisation de l'endommagement est généralement effectuée à partir d'images de coupes transverses 2-D examinées en microscopie optique. Ici, il a été réalisé pour la première fois à partir des volumes osseux issus des données SR- μ CT. Pour cela 11 coupes 2-D transverses d'épaisseur $25 \mu\text{m}$, régulièrement espacées par un intervalle de $180 \mu\text{m}$, ont été extraites des volumes reconstruits (Fig.6). Chacune de ces coupes sont constituées par l'empilement et la moyenne de 18 coupes élémentaires d'épaisseur $1.4 \mu\text{m}$ adjacentes, permettant ainsi d'avoir une profondeur de champ équivalente à celle de la microscopie à épifluorescence, d'abaisser le niveau de bruit et donc d'améliorer le contraste entre les microfissures et la matrice osseuse (Fig.6).

La densité surfacique de microfissures ($Dr.Dn [\#.\text{mm}^2]$) et la longueur moyenne des microfissures ($Cr.Le [\mu\text{m}]$) ont été mesurées manuellement par un seul expérimentateur à l'aide du logiciel *ImageJ* (NIH, USA) et du plugin *NeuronJ* (Erik Meijering, Pays-bas). La surface de l'os a été calculée à partir de la surface totale de chaque coupe d'os, incluant les pores (canaux de Havers et de Wolkman, lacunes ostéocytaires et cavités de résorption osseuse) comme reporté dans la littérature (Lee *et al.*, 2000; Zioupos, 2001). La porosité de l'os correspond aux pores précédemment cités. Leur structure est délimitée par les pixels de faible niveau de gris sur les coupes SR- μ CT. La segmentation des pores consiste à seuiller l'image en ne gardant que les pixels dont le niveau de gris est inférieur à 100 (valeur choisie de manière heuristique). Pour supprimer les pixels isolés (généralement du bruit), une ouverture (érosion puis dilatation) est appliquée à l'image binaire issue du seuillage. La

porosité exprimée en pourcentage correspond au nombre de pixels segmentés par rapport à la surface totale de l'os (en pixel).

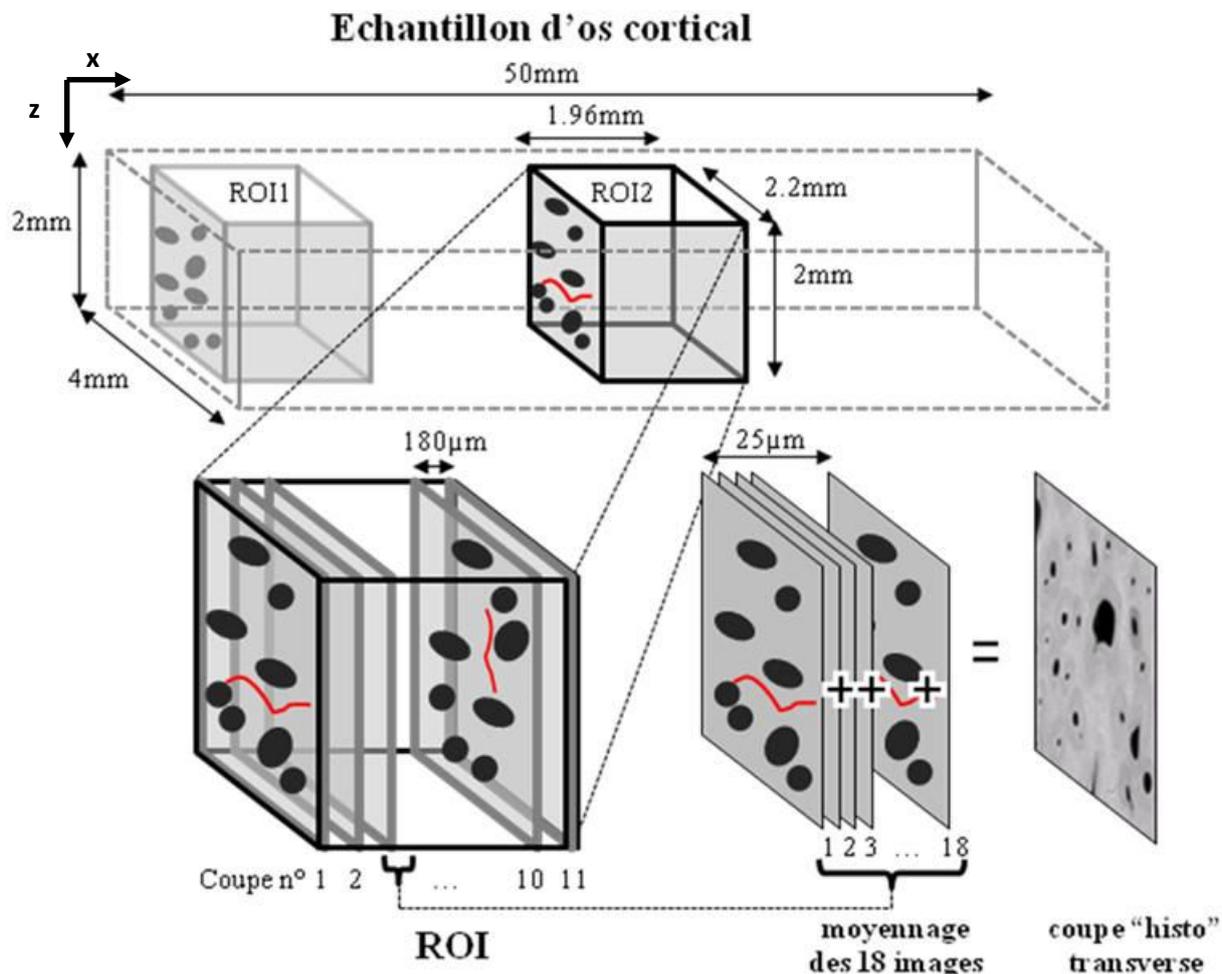
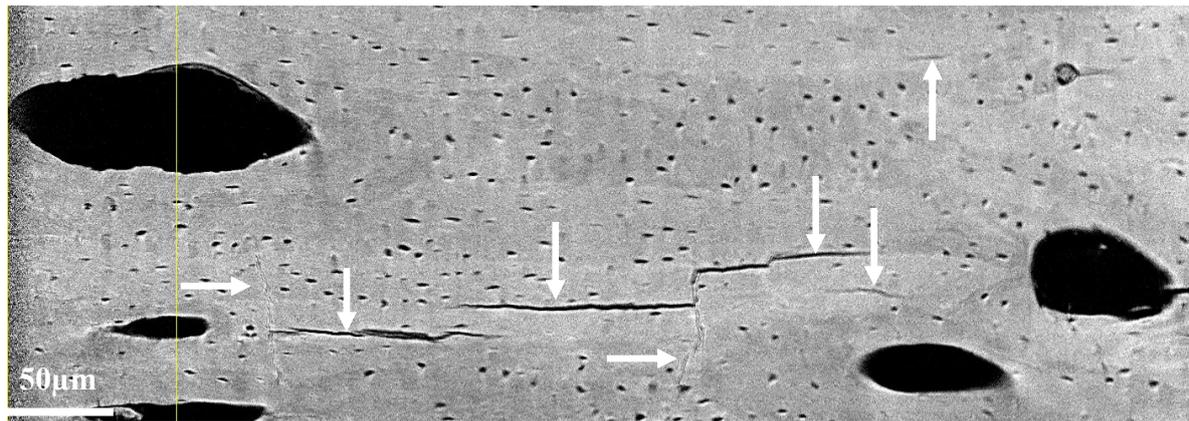
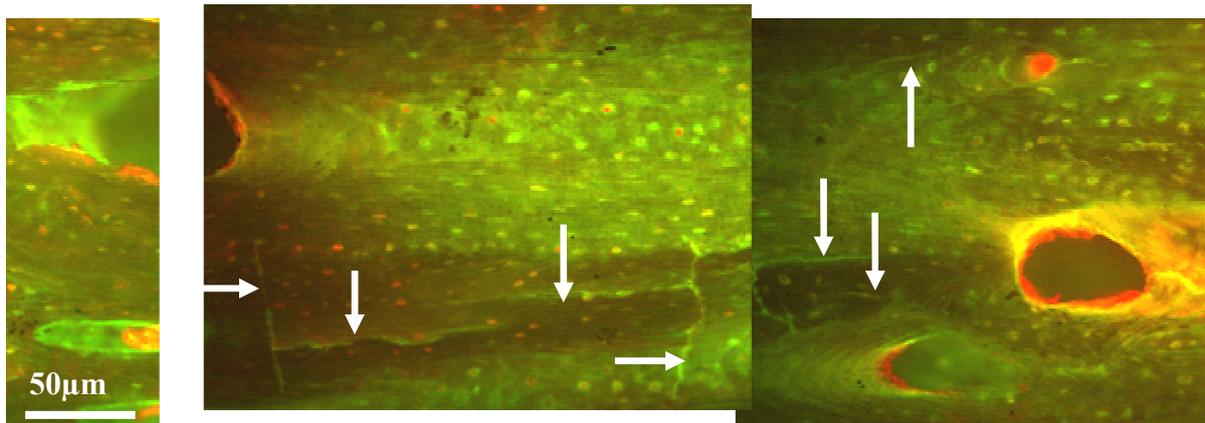


Figure 6 : De chacune des deux ROI acquises en SR- μ CT sont extraites 11 piles de 18 images (=25 μ m d'épaisseur) qui seront moyennées pour donner 11 coupes transverses. Les 11 coupes de chaque ROI sont espacées de 180 μ m.

Lors du processus d'analyse, toutes les microfissures localisées à moins de 500 μ m des bords de coupe de l'échantillon ont été ignorées (Fig.6) pour ne pas compter les éventuelles microfissures liées à la découpe de l'échantillon (O'Brien *et al.*, 2003; Arlot *et al.*, 2008). Afin de s'assurer que l'imagerie SR- μ CT n'ajoute pas d'endommagement artificiel, le micro-endommagement a été évalué avant et après SR- μ CT à la surface de certains échantillons par microscopie conventionnelle à épifluorescence en suivant le protocole établi par O'Brien et Lee (Lee *et al.*, 2000; O'Brien *et al.*, 2002). Aucun endommagement additionnel n'a été détecté. De plus, nous avons pu établir, de manière qualitative, que les mêmes microfissures sont visibles en SR- μ CT et histomorphométrie (Fig.7).



(a)



(b)

Figure 7 : Exemple de fissure visible en surface de l'échantillon par les deux techniques d'imagerie : (a) SR- μ CT, (b) Microscopie conventionnelle à épifluorescence. Les mêmes microfissures sont visibles dans les deux types d'image.

5.1.5 Analyse des données

Les analyses statistiques ont été réalisées grâce au module *statistics 7.6* de *Matlab 7.8* (Mathworks, Natick, MA, USA). Une analyse de la variance (ANOVA) monofactorielle non paramétrique pour des mesures répétées (Test de Friedman) a été réalisée pour tester l'effet de l'endommagement sur le paramètre non-linéaire élastique α_f . Les effets de la fatigue mécanique sur les caractéristiques du micro-endommagement entre les régions contrôles et endommagées ont été obtenus par un test non paramétrique de Wilcoxon (Signed-Rank). La relation entre le paramètre non-linéaire élastique α_f et les caractéristiques de l'endommagement a été obtenue par un test de corrélation de Spearman. Le niveau de significativité est défini avec une valeur $p < 0.05$.

5.2 Résultats

5.2.1 Fatigue mécanique

La variabilité [= (écart type)/(moyenne)] du module E_{LEBT} a été évaluée sur cinq échantillons, non inclus dans le protocole expérimental. Comme pour les tests de fatigue, le module d'Young initial E_{pre} est d'abord estimé avant de procéder à 20 cycles de flexion 4 points nécessaires pour la stabilisation du système. La procédure est répétée 6 fois avec repositionnement de l'échantillon. Nous avons mis en évidence un coefficient de variation moyen de E_{LEBT} égal à 6.3%.

Nous avons trouvé que le nombre de cycles nécessaire pour atteindre la réduction du module E_{LEBT} , varie sensiblement entre les échantillons (1182 ± 966 cycles pour la première étape d'endommagement) malgré des propriétés biomécaniques relativement homogènes (module $E_{pre} = 15.1 \pm 3.0$ GPa, densité apparente des échantillons secs $= 1792 \pm 155$ g.mm⁻³ et porosité $= 12.5 \pm 5.0$ %) (Table 1). Notons que le module élastique E_{sec} varie peu au cours de la fatigue (voir Annexe A3).

5.2.2 Evaluation de la non-linéarité par NRUS

Comme pour le paramètre mécanique, la précision des mesures NRUS a été déterminée à l'aide du coefficient de variation. Trois mesures NRUS ont été effectuées sur tous les échantillons avec décollage/recollage de l'émetteur piézo-électrique puis repositionnement. Nous avons trouvé un coefficient de variation moyen de α_f égal à 8.5%. Les valeurs initiales du paramètre non-linéaire α_f s'échelonnent entre -4.3 et -6.2, sauf pour un échantillon ayant une non-linéarité beaucoup plus élevée ($\alpha_f = -15.5$) (Table 1). La valeur moyenne initiale de α_f est égale à -5.6 ± 2.7 (Table 1). Les valeurs de α_f issues de la dernière étape d'endommagement (étape 1 à 4) de chacun des échantillons s'échelonnent de -4.7 et -16.2 avec une valeur moyenne de -8.7 ± 4.0 (Table 1).

Notons qu'en raison du retrait de trois échantillons après chaque étape d'endommagement (pour imagerie par SR- μ CT), le nombre d'échantillons mesurés change à chaque étape. Afin de tester des groupes de tailles identiques, l'ANOVA est effectuée en ne considérant d'une part que les échantillons qui ont subi l'ensemble de trois premières étapes d'endommagement (N=8) et d'autre part ceux qui ont subi l'ensemble des quatre étapes d'endommagement (N=4). Un effet significatif de l'endommagement sur le paramètre α_f a été

mesuré pour les quatre échantillons ayant subi quatre étapes d'endommagement ($F=12.6$, $p=0.001$) (Fig.8a) ainsi que pour les huit échantillons ayant subi trois étapes d'endommagement ($p<0.05$, pas de F car le nombre d'étapes est inférieur à quatre) (Fig.8b). Le résultat de la comparaison Post-Hoc dans le cas des quatre échantillons ayant subi quatre étapes d'endommagement donne des variations significatives entre toutes les étapes sauf lorsqu'elles sont contiguës. Dans le cas des huit échantillons ayant subi trois étapes d'endommagement, une variation significative existe entre toutes les étapes, sauf entre l'état initial et la première étape d'endommagement, ainsi qu'entre la première et seconde étape.

Nom des échantillons	Architecture		Biomécanique (humide)		Ultrasons (sec)				
	ρ_{dry} [g/cm ³]	Porosité [%]	E_{pre} initial [KPa]	Num cycles	α_f initial	α_f step 1	α_f step 2	α_f step 3	α_f step 4
ind01ech03	1753	11.4	15215	155	-6.0	-6.4			
ind05ech10	1897	13.2	17069	120	-4.8	-4.7			
ind04ech04	1870	6.3	17294	906	-15.5	-15.3			
ind03ech05	1865	10.3	17382	2100	-4.6	-5.9	-5.8		
ind04ech03	1353	26.5	9344	175	-4.7	-6.4	-12.8		
ind05ech03	1854	12.4	15654	1991	-4.4	-9.8	-15.4		
ind04ech07	1887	7.3	15722	1788	-6.0	-9.7	-12.8	-16.2	
ind03ech06	2005	5.6	21857	6226	-6.2	-6.0	-6.1	-6.5	
ind04ech11	1904	9.8	16598	9220	-4.7	-5.7	-6.4	-7.1	
ind05ech05	1893	9.4	16296	3275	-4.5	-4.6	-4.2	-6.2	
ind01ech06	1621	15.8	13157	7375	-4.3	-5.0	-4.6	<i>nm</i>	-6.0
ind01ech07	1864	14.2	16055	4221	-5.0	-4.4	-5.0	-5.9	-6.0
ind01ech09	1714	13.1	13470	13826	-5.1	-6.0	-6.1	-6.5	-6.3
ind03ech01	1684	12.6	11876	3616	-4.3	-4.9	-6.2	-6.1	-7.3
ind03ech02	1821	16.3	14406	14396	-4.8	-5.2	-5.9	-6.6	-10.7
ind05ech06	1695	15.2	10868	4919	-5.4	-5.3	<i>nm</i>	-6.2	-6.9
Moyenne	1792	12.5	15141	4644	-5.6	-6.5	-7.6	-7.5	7.2
Ecart type	155	5.0	2980	4544	2.7	2.8	3.8	3.3	1.8

Table I: Caractéristiques des échantillons d'os cortical humain: la densité apparente (ρ_{dry}), le module mécanique LEBT (E_{LEBT}), le nombre d'étapes d'endommagement, le nombre total de cycles, les valeurs initiales et finales du paramètre non-linéaire élastique (α_f). [*nm* = non mesuré]

D'après la table I, trois échantillons voient leur variation relative de α_f augmenter fortement (>120%) après les trois premières étapes de fatigue. Cette variation importante du paramètre α_f suggère l'apparition d'un endommagement important (sous forme d'une accumulation de microfissures ou de l'apparition d'une macrofissure). Sur ces trois échantillons (ind04ech03, ind04ech07 et ind05ech03), seul l'échantillon ind04ech03 se distingue des quinze autres échantillons. Il possède en effet la plus grande porosité (26.5%), la

plus faible densité apparente ($1353\text{g}\cdot\text{cm}^3$) et le plus petit module élastique (9.3GPa). Pour plus de clarté, nous avons choisi de ne pas faire apparaître ces trois échantillons sur la Fig.9 où nous observons une augmentation de la variation relative du paramètre non-linéaire $\Delta\alpha_f/\alpha_f$ après chaque étape d'endommagement pour les treize autres échantillons. La variation médiane maximale est $\Delta\alpha_f/\alpha_f = 32\%$.

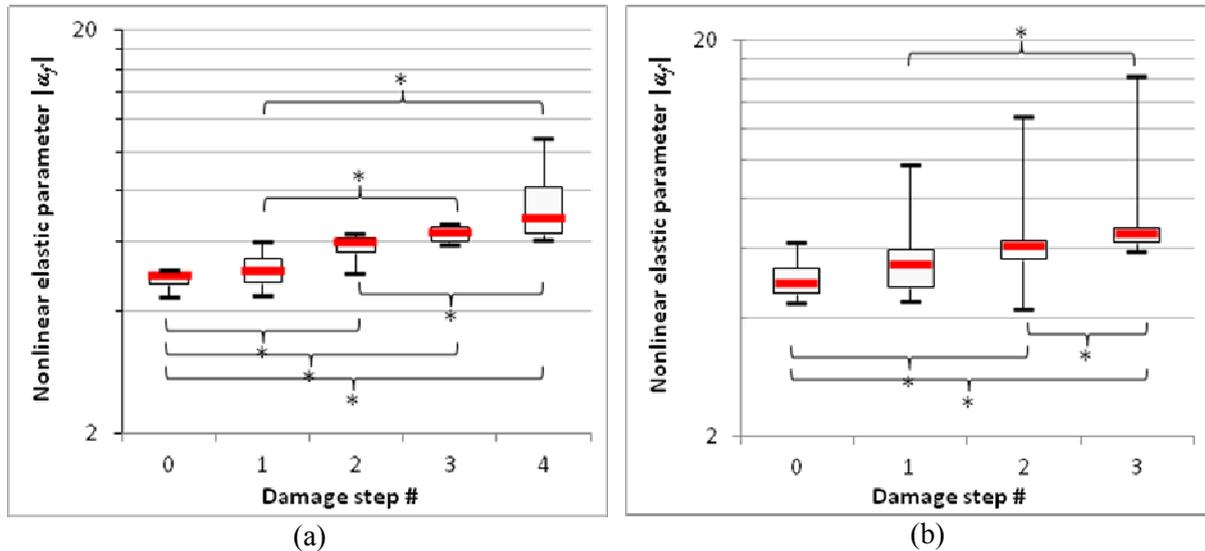


Figure 8: Evolution du paramètre non-linéaire élastique $|\alpha_f|$ après chaque étape d'endommagement, (a) pour les 4 échantillons ayant subi 4 étapes d'endommagement et (b) pour les 8 échantillons ayant subi 3 étapes d'endommagement. (*) signifie une différence significative ($p < 0.05$) entre deux étapes.

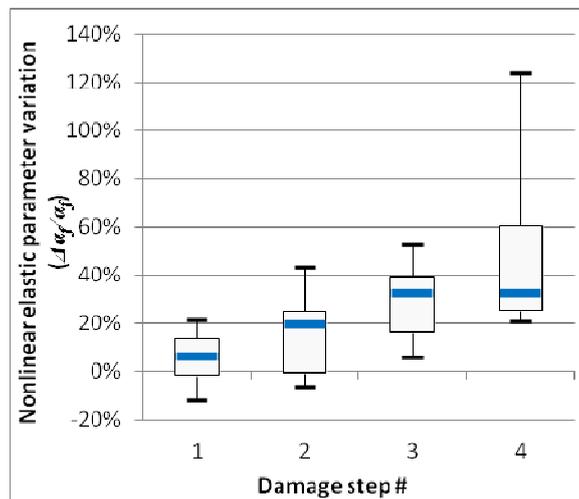


Figure 9: Evolution de la variation du paramètre non-linéaire élastique ($\Delta\alpha_f/\alpha_f$) après chaque étape d'endommagement, sans les 3 échantillons les plus non-linéaires.

Notons enfin, qu'aucune corrélation n'a été trouvée entre le paramètre non-linéaire élastique non classique α_f ou sa variation $\Delta\alpha_f/\alpha_f$ et le module initial E_{LEBT} , la densité apparente sèche ρ_{dry} ou la porosité des échantillons.

5.2.3 Caractéristiques de l'endommagement

Lorsque nous prenons en compte toutes les microfissures détectées sur les sections 2-D provenant des volumes 3-D SR- μ CT (Fig.10), les caractéristiques (Cr.Le et Cr.Dn) des microfissures ne sont pas statistiquement différentes entre la ROI1 (région contrôle) (Cr.Le=71.8 \pm 13.7 μ m; Cr.Dn=1.92 \pm 1.19#/mm²) et la ROI2 (région endommagée) (Cr.Le=65.3 \pm 10.3 μ m; Cr.Dn =2.20 \pm 1.25#/mm²). Notons la grande variabilité inter-échantillon avec une densité de microfissures de la ROI1 variant entre 0.13#/mm² et 3.88#/mm² et entre 0.26 #/mm² et 4.59 #/mm² pour la ROI2. Les résultats sont regroupés dans la table II.

Par contre, en examinant la distribution des microfissures en fonction de leur longueur, on note que l'endommagement progressif des échantillons par flexion 4 points se traduit par une augmentation significative ($p=0.01$) de la densité de petites microfissures (Cr.Le.Q1) tandis que la densité des microfissures plus longues reste inchangée (Fig.11). En effet, en ne considérant que les petites fissures dont la longueur est inférieure au premier quartile de chaque échantillon (la longueur moyenne des fissures du 1^{er} quartile est Cr.Le.Q1=31.9 \pm 8.0 μ m), leur densité double entre la région contrôle ROI1 (Cr.Dn.Q1=0.37 \pm 0.26#/mm²) et la région endommagée ROI2 (Cr.Dn.Q1=0.63 \pm 0.45#/mm²) (Table II).

Enfin, la variation relative de la densité des petites fissures Cr.Dn.Q1 entre la ROI1 et la ROI2 (Δ Cr.Dn.Q1/Cr.Dn.Q1) est significativement corrélée avec la variation relative du paramètre non-linéaire $\Delta\alpha_f/\alpha_f$ ($r=0.55$, $p<0.005$) (si l'échantillon outlier ind05ech03 ayant la plus forte variation non-linéaire n'est pas pris en compte) (Fig.12a). De plus, lorsque nous comparons la variation relative de la longueur moyenne de ces petites fissures (Δ Cr.Le.Q1/Cr.Le.Q1) avec $\Delta\alpha_f/\alpha_f$ (sans prendre en compte l'échantillon ind05ech03), nous observons (Fig.12b) également une corrélation significative et négative ($r=-0.73$, $p=0.003$).

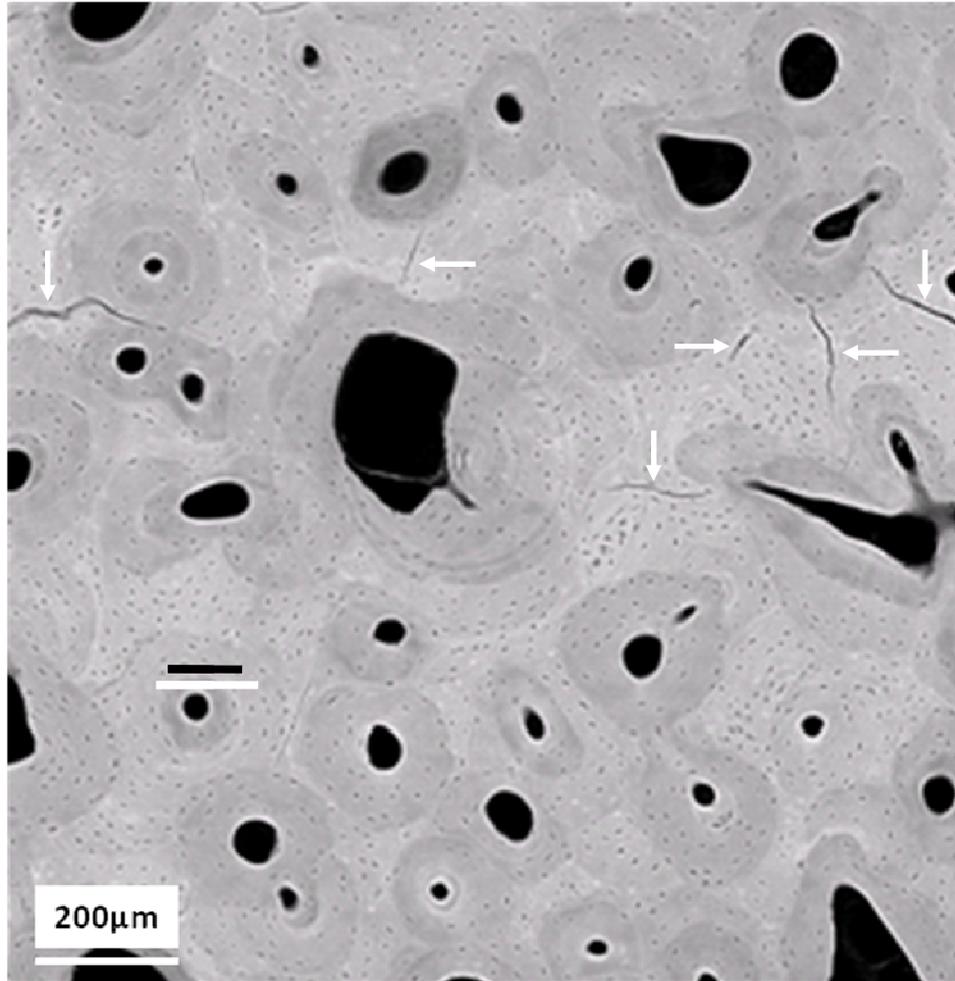


Figure 10: Exemple de coupe 2-D transverse provenant de la zone endommagée (ROI2) de l'échantillon ind04ech07. Les microfissures sont désignées par une flèche blanche.

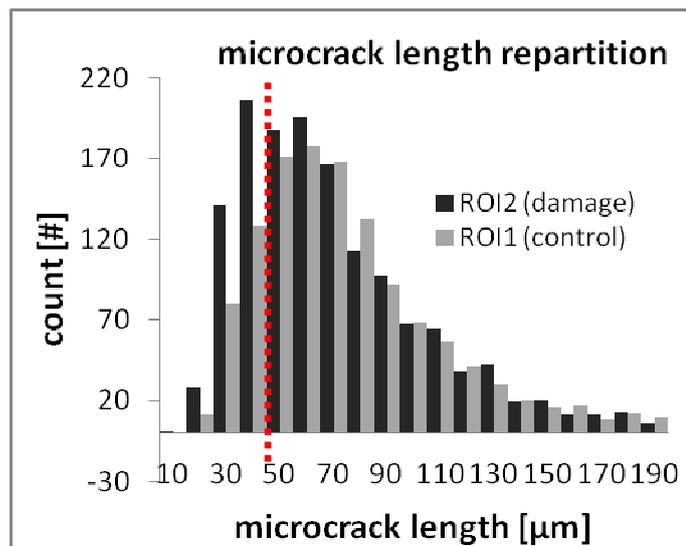


Figure 11: Distribution des microfissures en fonction de leur longueur, dans la zone contrôle (ROI1) et la zone endommagée (ROI2) pour l'ensemble des seize échantillons. Le nombre de microfissures ayant une longueur inférieure à 40μm est significativement supérieur ($p=0.01$) dans la zone endommagée.

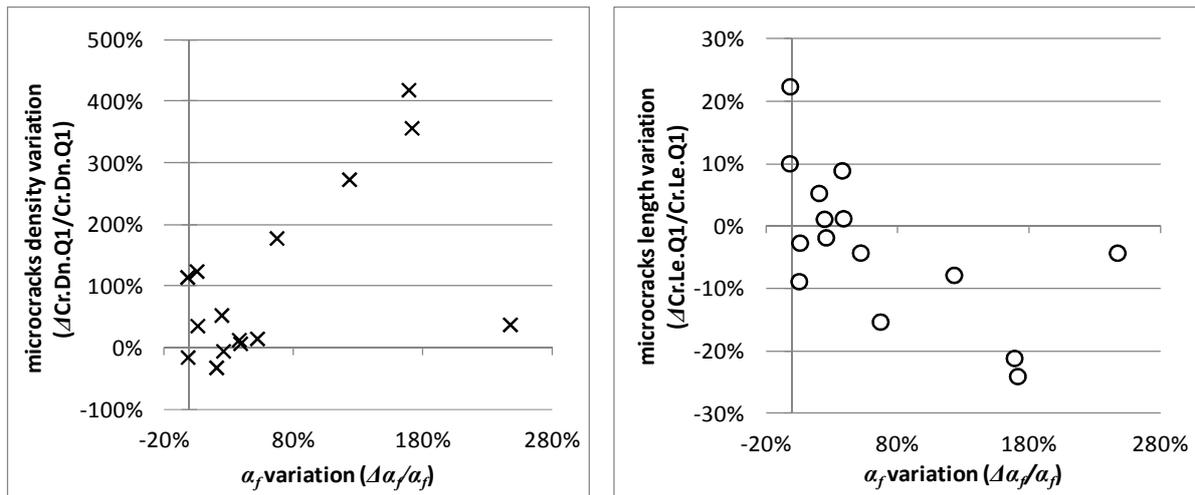


Figure 12: Relation entre la variation du paramètre non-linéaire élastique ($\Delta\alpha_f/\alpha_f$) et la variation de la densité de petites microfissures.

Nom des échantillons	Cr.Dn [#/mm ²]		Cr.Le [μm]		Cr.Dn.Q1 [#/mm ²]		Cr.Le.Q1 [μm]	
	ROI1	ROI2	ROI1	ROI2	ROI1	ROI2	ROI1	ROI2
ind01ech03	3.88	3.03	80.4	68.1	0.73	0.98	35.8	34.8
ind05ech10	3.16	2.76	64.1	65.4	0.72	0.60	27.8	34.0
ind04ech04	1.53	1.58	58.4	56.2	0.19	0.41	23.3	25.6
ind03ech05	1.97	1.77	69.7	69.0	0.35	0.53	31.5	31.8
ind04ech03	0.90	1.84	76.8	62.9	0.19	0.88	45.2	34.2
ind05ech03	3.17	2.84	85.9	70.6	0.67	0.91	38.0	36.3
ind04ech07	2.13	4.14	78.5	57.1	0.38	1.96	41.4	32.6
ind03ech06	0.36	0.44	99.5	72.5	0.08	0.18	46.7	42.5
ind04ech11	3.23	3.11	77.2	72.9	0.65	0.74	32.2	30.8
ind05ech05	2.60	4.59	73.1	95.5	0.43	0.45	31.3	31.6
ind01ech06	0.13	0.26	49.5	57.6	0.02	0.02	22.7	24.7
ind01ech07	2.49	2.01	55.4	60.2	0.61	0.41	26.2	27.6
ind01ech09	0.23	0.25	51.1	54.4	0.02	-	17.3	-
ind03ech01	1.06	1.90	80.4	53.5	0.12	0.33	28.8	24.4
ind03ech02	1.08	1.99	66.0	61.6	0.16	0.61	30.3	27.9
ind05ech06	2.80	2.71	82.6	66.9	0.51	0.48	32.4	31.7
Moyenne	1.92	2.20	71.8	65.3	0.37	0.63	31.9	31.4
Ecart type	1.19	1.25	13.7	10.3	0.26	0.45	8.1	4.9

Table II: Caractéristiques des microfissures des échantillons au niveau de la région contrôle (ROI1) et de la région endommagée (ROI2). Cr.Dn et Cr.Le correspondent à la densité de microfissure et à leur longueur moyenne respectivement. Cr.Dn.Q1 correspond à la densité de microfissures dont la longueur est inférieure au seuil dont la valeur correspond au 1^{er} quartile observée dans la région contrôle (ROI1) de chaque échantillon. Cr.Le.Q1 correspond à la longueur moyenne des microfissures inférieure au seuil.

5.3 Discussion

5.3.1 Analyse de la variation des paramètres non-linéaires acoustiques

Cette étude est la première étude où les paramètres biomécanique E_{LEBT} et non-linéaire élastique hystérétique α_f ainsi que les caractéristiques de l'endommagement osseux sont évalués conjointement dans des échantillons d'os cortical humain. Les mesures NRUS répétées après chaque étape d'endommagement ont permis de tester l'effet de la fatigue en flexion 4 points sur une même série d'échantillons. Ainsi, nous avons pu observer que les étapes d'endommagement ont un effet significatif sur le paramètre hystérétique α_f obtenu par NRUS. Il semble donc que le paramètre α_f puisse servir de marqueur de l'endommagement induit par les tests de fatigue biomécanique réalisés *in-vitro*. Ces résultats confirment les observations réalisées dans les études précédentes (Muller *et al.*, 2005; Muller *et al.*, 2006; Muller *et al.*, 2008). Notre étude apporte un éclairage supplémentaire, par l'étude des caractéristiques de l'endommagement accumulé, sur le lien qui existe entre non-linéarité et caractéristiques du micro-endommagement. En effet, grâce aux mesures répétées sur la même série d'échantillons d'os cortical, nous avons été en mesure de montrer qu'il existe une corrélation significative entre le paramètre non-linéaire élastique hystérétique α_f et la variation de la densité ou longueur des petites fissures (Cr.Dn.Q1).

5.3.2 Origine des non-linéarités non classiques de l'os cortical

La non-linéarité hystérétique intrinsèque (α_f) de l'os cortical humain a été mesurée, rendant la comparaison possible avec d'autres matériaux. Ainsi la valeur initiale de la non-linéarité ($\alpha_f = -5.6 \pm 2.7$) du premier mode de compression est semblable à celle rapportée au chapitre 4 pour une autre série d'échantillons d'os cortical bovin non endommagés ($\alpha_f = -5.0 \pm 2.5$). Cette valeur est faible : dix fois moins grande que pour les métaux polycristallins (Voir chapitre 4) ou cent fois moins grande que pour les roches (Johnson and Sutin, 2005) (Voir chapitre 4), ce qui signifie que les échantillons d'os cortical humain non fatigués possèdent un faible comportement élastique non-linéaire hystérétique. L'intérêt de l'expérience rapportée ici réside dans l'endommagement provoqué de manière progressive et contrôlée, chaque échantillon étant son propre témoin. Même après l'endommagement progressif mis en œuvre au cours de ces expériences, le comportement non-linéaire reste faible si on le compare aux autres matériaux.

Comme le comportement hystérétique de la relation contrainte/déformation proviendrait de phénomènes de micro-friction et/ou de micro-adhésion et/ou de clappement associé à la présence d'inhomogénéité souples à différentes échelles (voir le chapitre 2 pour plus de détails), la source de non-linéarités de l'os pourrait être liée à au moins l'un de ces processus. Comme l'os est un matériau multi-échelle (Weiner and Wagner, 1998), le processus pourrait prendre sa source aux différentes échelles. A l'échelle nanoscopique, les unités nano-structurales de l'os sont les fibres de collagène minéralisées. Le décollement et le glissement des fibres de collagène (Gupta and Zioupos, 2008b; Ritchie *et al.*, 2009) pourraient générer des effets non-linéaires tels que ceux mesurés lors de la délamination de matériaux composites (Van den Abeele *et al.*, 2009) tandis que des frottements de type « *stick/slip* » entre les fibrilles de collagène et les nano-cristaux (Gupta *et al.*, 2005; Tai *et al.*, 2006; Buehler, 2007; Gupta and Zioupos, 2008a) pourraient aussi être à l'origine d'un comportement élastique hystérétique (voir paragraphe 2.1.1 du chapitre 2). D'autre part, les nano-cristaux d'hydroxyapatite possèdent une structure cristalline de type cubique face centrée comme le cuivre. Ils seraient donc susceptibles de contenir des dislocations, connues pour être aussi à l'origine de comportements hystérétiques (Nazarov, 1991; Kustov *et al.*, 1999). A l'échelle microscopique, le comportement non-linéaire pourrait avoir ses origines dans le clappement des lamelles ou le glissement des ostéons le long de la ligne cémentante (Behiri and Bonfield, 1980; Hiller *et al.*, 2003). A l'échelle micro/mésoscopique, les fissures seraient les principales structures générant des phénomènes d'acoustiques non-linéaires. Cette liste n'est pas exhaustive mais ouvre des perspectives quant à la multiplicité des facteurs à l'origine du comportement élastique non-linéaire de l'os cortical. En l'état, nous ne pouvons tirer aucune conclusion sur l'origine du comportement non-linéaire natif (c'est à dire préalable à toute étape d'endommagement) des échantillons d'os cortical. Il peut trouver son origine dans un endommagement, de type diffus ou fissures, natif (pré-existant) ou provoqué au moment de la préparation des échantillons. Un tel endommagement est mis en évidence par la mesure des régions de contrôle localisées aux extrémités des échantillons. Quand aux autres sources potentielles d'endommagement (dislocation, délamination, glissement des ostéons, etc.), il serait nécessaire d'en évaluer l'ordre de grandeur et de les explorer par des expériences dédiées. En revanche, chaque échantillon étant son propre témoin, nous pouvons attribuer l'augmentation du comportement non-linéaire hystérétique après fatigue à l'accumulation d'endommagement.

D'autre part, Il ne faut pas négliger le rôle de l'eau dont la saturation, les effets de capillarité et la variation de pression du flux devraient aussi jouer un rôle dans la non-linéarité de l'os, comme c'est le cas dans les roches (Van den Abeele *et al.*, 2002) ou le béton (Payan *et al.*, 2010). La présence de fluide pourrait modifier les propriétés non-linéaires acoustiques en changeant la viscoélasticité et les processus de relaxation de l'os cortical (voir annexe A5).

5.3.3 Analyse du micro-endommagement osseux initial

Dans cette étude, la densité de microfissures (Cr.Dn) dans la zone contrôle (ROI1) des échantillons d'os cortical est plus grande que les valeurs trouvées dans des échantillons de fémurs humains ($0.21 \pm 0.16 \#/\text{mm}^2$ (Norman and Wang, 1997), $0.21 \pm 0.21 \#/\text{mm}^2$ (Sobelman *et al.*, 2004), $0.15 \pm 0.16 \#/\text{mm}^2$ (Wasserman *et al.*, 2008) et $0.1 \pm 0.06 \#/\text{mm}^2$ (Landrigan and Roeder, 2009)). Seules deux études ont montré des Cr.Dn comparables à ce que nous avons trouvé (entre $1 \#/\text{mm}^2$ to $5 \#/\text{mm}^2$ pour des femmes âgées de plus de 45 ans (Schaffler *et al.*, 1995) et supérieure à $1.5 \#/\text{mm}^2$ pour des fémurs humains âgés de plus de 70 ans (Zioupos, 2001)). Cependant, il faut noter que la densité de microfissures augmente avec l'âge (Schaffler *et al.*, 1995; Norman and Wang, 1997; Zioupos, 2001; Diab and Vashishth, 2007; Wasserman *et al.*, 2008) et que l'âge des donneurs de notre étude est plus élevé (88.5 ± 9.8) que dans les études précédemment citées où l'âge moyen est de l'ordre de 75 ± 10 .

L'âge ne serait pas le seul facteur expliquant la différence de résultat entre les différentes études. En effet, la densité de microfissures semble dépendre de la technique utilisée pour évaluer les caractéristiques du micro-endommagement. Ainsi, lorsque l'évaluation du micro-endommagement est réalisée par microscopie à épifluorescence (Lee *et al.*, 1998; Huja *et al.*, 1999) ou par microscopie électronique à balayage (Backscatter Scanning Electron (BSE)) (Schaffler *et al.*, 1994), le nombre de microfissures comptabilisées peut doubler par rapport au nombre de microfissures mesurées par microscopie conventionnelle avec coloration à la Fuchsine. Dans notre étude, l'évaluation du micro-endommagement osseux a été réalisée pour la première fois à partir d'images de SR- μ CT dont les caractéristiques 2-D sont proches de celles de BSE (mesure de la densité minérale osseuse, grande résolution (quelques μm) et faible profondeur de champ (quelques μm)). Il serait intéressant de comparer l'évaluation des microfissures par différentes techniques (SR- μ CT, BSE, microscopie confocale et microscopie conventionnelle).

La longueur moyenne des microfissures est en accord avec la littérature (Burr and Stafford, 1990; Norman and Wang, 1997; Lee *et al.*, 1998; Donahue *et al.*, 2000; O'Brien *et*

al., 2000; Sobelman *et al.*, 2004; Diab *et al.*, 2006; Landrigan *et al.*, 2011). Ainsi, la valeur moyenne Cr.Le se situe entre 50 et 150 μ m pour de l'os cortical humain mesuré sur des sections transverses (perpendiculaires à l'orientation des osteons).

5.3.4 Analyse du micro-endommagement osseux induit par fatigue

Les résultats publiés concernant le micro-endommagement osseux induit par fatigue sont contradictoires. Plusieurs études rapportent que les tests de fatigue en flexion 3 ou 4 points sur des éprouvettes d'os cortical induisent du micro-endommagement et augmentent la densité de microfissures dans l'os cortical humain (Boyce *et al.*, 1998; Sobelman *et al.*, 2004) ou bovin (Diab and Vashishth, 2005) ainsi que la longueur des microfissures (Boyce *et al.*, 1998; Sobelman *et al.*, 2004). Les mêmes auteurs ont montré que la réduction progressive de 10% du module mécanique E_{LEBT} accompagne l'accumulation du micro-endommagement osseux (Boyce *et al.*, 1998; Sobelman *et al.*, 2004; Diab and Vashishth, 2005; Diab *et al.*, 2006). Cependant, une expérience récente dédiée au test de flexion 4 points sur l'os cortical bovin (Landrigan and Roeder, 2009), n'a montré aucune variation de Cr.Dn et seulement une augmentation de Cr.Le (contrôle : Cr.Le=41 μ m \pm 22 μ m / fatigué: Cr.Le=108 μ m \pm 63 μ m) après une réduction de 26% du E_{LEBT} , sans variation significative du module sécant ou du module à la charge. Dans une autre étude basée sur un protocole expérimental similaire mais avec des fémurs entiers de chien (Burr *et al.*, 1998), les auteurs ont observé un effet de seuil dans l'accumulation des microfissures qui ne commencerait qu'à partir d'une réduction de 15% du module à la charge. De plus, ils ont trouvé que la longueur Cr.Le n'est pas significativement différente entre les échantillons contrôles et ceux fatigués, comme c'est le cas dans notre étude. Burr suggère que l'endommagement est initié au niveau tissulaire en tant que nano-endommagement avant de devenir visible sous forme de microfissures. Le nano-endommagement, habituellement associé à l'endommagement diffus, est suspecté d'être produit préférentiellement pendant la phase initiale du processus de fatigue (Boyce *et al.*, 1998; Sobelman *et al.*, 2004; Diab and Vashishth, 2005; Diab *et al.*, 2006) tandis que la propagation des microfissures et l'initiation d'une microfissure aurait lieu dans un second et troisième temps. Ce processus est bien connu pour les matériaux composites à fibres renforcées. Il est décrit par la courbe de dégradation du module en trois phases (Reifsnider and Jamison, 1982).

La relation entre les caractéristiques du micro-endommagement osseux (densité et longueur) et la réduction du module a été observée pour la première fois pour des échantillons

de tibias bovins pendant un test de fatigue en tension (O'Brien *et al.*, 2003; 2007). O'Brien observe que la formation de nouvelles microfissures est initiée principalement pendant la première phase d'endommagement, ce qui vient confirmer les précédentes hypothèses et observations (Boyce *et al.*, 1998; Sobelman *et al.*, 2004; Diab and Vashishth, 2005; Diab *et al.*, 2006). Ces nouvelles microfissures grandissent pour atteindre une taille maximale critique (environ 100 μ m) conditionnée par la présence des lignes cémentantes qui agissent comme des barrières à la propagation des fissures (Presbitero *et al.*, 2012). Enfin, O'Brien a trouvé que seulement 6% des microfissures natives se propageaient lors de la fatigue.

Nos résultats s'inscrivent dans ce processus de formation progressive du micro-endommagement décrit par plusieurs auteurs. En effet, nous avons observé un doublement de la densité de petites microfissures Cr.Dn.Q1 (dont la longueur est inférieure au premier quartile) sans qu'il n'y ait d'augmentation de la densité Cr.Dn globale des microfissures ni d'accroissement de la longueur moyenne Cr.Le des microfissures préexistantes. Cela suggère que nos expériences de fatigue ont mené nos échantillons à un état d'endommagement final peu marqué, insuffisant pour provoquer une augmentation de la longueur moyenne des fissures, mais suffisant toutefois pour provoquer l'apparition de petites fissures. Il est possible que l'augmentation du comportement non linéaire observé soit sensible aux différentes formes d'endommagement suggérées par Burr (Burr *et al.*, 1998), qu'il soit diffus précoce ou se manifeste par l'apparition de nouvelles microfissures. Nos résultats montrent un lien entre α_f et la densité de petites microfissures (qui augmente au cours de la fatigue), mais on ne peut pas écarter un effet de l'endommagement diffus sur la non linéarité hystérétique. Notons que parmi les trois échantillons les plus non-linéaires (ind04ech03, ind04ech07 et ind05ech03), seul l'échantillon ind05ech03 se distingue des autres par sa faible progression de la densité de petites fissures nouvellement formées. Il se pourrait qu'une macrofissure se soit développée dans cet échantillon.

Pour résumer, l'endommagement d'échantillons d'os cortical par fatigue mécanique (réduction de E_{LEBT} et augmentation de la densité de petites microfissures) se manifeste par une augmentation du comportement non linéaire hystérétique. Le processus d'endommagement a semble-t-il été arrêté à un stade précoce, sans augmentation significative ni de la densité ni de la longueur des fissures prises dans leur ensemble.

5.4 Conclusions et perspectives

Nos résultats montrent :

- i) Une décroissance progressive du module E_{LEBT} pendant les sessions de fatigue, suggérant une accumulation de micro-endommagement, en accord avec de nombreux travaux antérieurs (Boyce *et al.*, 1998; Diab and Vashishth, 2005; Diab *et al.*, 2006);
- ii) Une augmentation du nombre de petites microfissures dans les régions endommagées comparées aux régions non fatiguées (contrôle). Ces petites microfissures, dont la taille est inférieure au 1^{er} quartile, ont pu être créées pendant les étapes de fatigue (O'Brien *et al.*, 2003);
- iii) Un effet significatif des étapes d'endommagement sur l'augmentation du paramètre non-linéaire élastique α_f .
- iv) Une corrélation significative entre la variation du paramètre α_f et l'augmentation relative du nombre de petites microfissures.

A partir de toutes ces observations expérimentales, nous pouvons formuler l'hypothèse que le paramètre non-linéaire α_f peut servir d'un indicateur du **micro-endommagement précoce** de l'os. Il reste cependant de nombreux verrous scientifiques et techniques à résoudre : (1) trouver d'autres relations quantitatives et qualitatives entre le paramètre non-linéaire α_f et l'endommagement (α_f est-il sensible à la propagation d'une microfissure ?) ; (2) Déterminer les seuils de détectabilité/sensibilité de la mesure; (3) Mettre au point une technique d'acoustique non-linéaire utilisable *in-vivo* et la valider.

Bibliographie

- Arlot, M. E., Burt-Pichat, B., Roux, J. P., Vashishth, D., Bouxsein, M. L., and Delmas, P. D. (2008). "Microarchitecture influences microdamage accumulation in human vertebral trabecular bone," *Journal of Bone and Mineral Research* **23**, 1613-1618.
- ASTM (2008). "Standard Test Method for Flexural Properties of Unreinforced and Reinforced Plastics and Electrical Insulating Materials by Four-Point Bending," p. D6272.
- Behiri, J., and Bonfield, W. (1980). "Crack velocity dependence of longitudinal fracture in bone," *Journal of Materials Science* **15**, 1841-1849.
- Boyce, T. M., Fyhrie, D. P., Glotkowski, M. C., Radin, E. L., and Schaffler, M. B. (1998). "Damage type and strain mode associations in human compact bone bending fatigue," *Journal of Orthopaedic Research* **16**, 322-329.
- Buehler, M. J. (2007). "Molecular nanomechanics of nascent bone: fibrillar toughening by mineralization," *Nanotechnology* **18**, 295102.
- Burr, D. B., and Stafford, T. (1990). "Validity of the Bulk-Staining Technique to Separate Artifactual from In vivo Bone Microdamage," *Clinical Orthopaedics and Related Research*, 305-308.
- Burr, D. B., Turner, C. H., Naick, P., Forwood, M. R., Ambrosius, W., Hasan, M. S., and Pidaparti, R. (1998). "Does microdamage accumulation affect the mechanical properties of bone?," *Journal of Biomechanics* **31**, 337-345.
- Currey, J. D. (1988). "The effect of porosity and mineral content on the Young's modulus of elasticity of compact bone," *Journal of Biomechanics* **21**, 131-139.
- Diab, T., Condon, K. W., Burr, D. B., and Vashishth, D. (2006). "Age-related change in the damage morphology of human cortical bone and its role in bone fragility," *Bone* **38**, 427-431.
- Diab, T., and Vashishth, D. (2005). "Effects of damage morphology on cortical bone fragility," *Bone* **37**, 96-102.
- Diab, T., and Vashishth, D. (2007). "Morphology, localization and accumulation of in vivo microdamage in human cortical bone," *Bone* **40**, 612-618.
- Donahue, S., Sharkey, N., Modanlou, K., Sequeira, L., and Martin, R. (2000). "Bone strain and microcracks at stress fracture sites in human metatarsals," *Bone* **27**, 827-833.
- Granke, M., Grimal, Q., Saïed, A., Nauleau, P., Peyrin, F., and Laugier, P. (2011). "Change in porosity is the major determinant of the variation of cortical bone elasticity at the millimeter scale in aged women," *Bone*.
- Griffin, L. V., Gibeling, J. C., Gibson, V. A., Martin, R. B., and Stover, S. M. (1997). "Artifactual nonlinearity due to wear grooves and friction in four-point bending experiments of cortical bone," *Journal of Biomechanics* **30**, 185-188.
- Gupta, H., and Zioupos, P. (2008a). "Fracture of bone tissue: The 'hows' and the 'whys'," *Medical Engineering & Physics* **30**, 1209-1226.
- Gupta, H., and Zioupos, P. (2008b). "Fracture of bone tissue: The 'hows' and the 'whys'," *Medical Engineering & Physics* **30**, 1209-1226.
- Gupta, H. S., Wagermaier, W., Zickler, G. A., Aroush, D. R. B., Funari, S. S., Roschger, P., Wagner, H. D., and Fratzl, P. (2005). "Nanoscale deformation mechanisms in bone," *Nano Letters* **5**, 2108-2111.
- Hiller, L., Stover, S., Gibson, V., Gibeling, J., Prater, C., Hazelwood, S., Yeh, O., and Martin, R. (2003). "Osteon pullout in the equine third metacarpal bone: effects of ex vivo fatigue," *Journal of orthopaedic research* **21**, 481-488.

- Huja, S. S., Sayeed Hasan, M., Pidaparti, R., Turner, C. H., Garetto, L. P., and Burr, D. B. (1999). "Development of a fluorescent light technique for evaluating microdamage in bone subjected to fatigue loading," *Journal of biomechanics* **32**, 1243-1249.
- Johnson, P., and Sutin, A. (2005). "Slow dynamics and anomalous nonlinear fast dynamics in diverse solids," *Journal of the Acoustical Society of America* **117**, 124-130.
- Kustov, S., Gremaud, G., Benoit, W., Golyandin, S., Sapozhnikov, K., Nishino, Y., and Asano, S. (1999). "Strain amplitude-dependent anelasticity in Cu-Ni solid solution due to thermally activated and athermal dislocation-point obstacle interactions," *Journal of Applied Physics* **85**, 1444-1459.
- Landrigan, M., and Roeder, R. (2009). "Systematic error in mechanical measures of damage during four-point bending fatigue of cortical bone," *Journal of biomechanics* **42**, 1212.
- Landrigan, M. D., Jiliang, L., Turnbull, T. L., Burr, D. B., Niebur, G. L., and Roeder, R. K. (2011). "Contrast-enhanced micro-computed tomography of fatigue microdamage accumulation in human cortical bone," *Bone* **48**, 443-450.
- Larrue, A., Rattner, A., Peter, Z. A., Olivier, C., Laroche, N., Vico, L., and Peyrin, F. (2011). "Synchrotron Radiation Micro-CT at the Micrometer Scale for the Analysis of the Three-Dimensional Morphology of Microcracks in Human Trabecular Bone," *PLoS ONE* **6**, e21297.
- Lee, T. C., Arthur, T. L., Gibson, L. J., and Hayes, W. C. (2000). "Sequential labelling of microdamage in bone using chelating agents," *Journal of Orthopaedic Research* **18**, 322-325.
- Lee, T. C., Myers, E. R., and Hayes, W. C. (1998). "Fluorescence-aided detection of microdamage in compact bone," *Journal of Anatomy* **193**, 179-184.
- Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., Johnson, P., and Laugier, P. (2008). "Nonlinear ultrasound can detect accumulated damage in human bone," *Journal of Biomechanics* **41**, 1062-1068.
- Muller, M., Sutin, A., Guyer, R., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2005). "Nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) applied to damage assessment in bone," *Journal of the Acoustical Society of America* **118**, 3946-3952.
- Muller, M., Tencate, J. A., Darling, T. W., Sutin, A., Guyer, R. A., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2006). "Micro-damage assessment using non-linear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) techniques: A feasibility study," *Ultrasonics* **44**, E245-E249.
- Nazarov, V. Y. (1991). "Copper structure influence on its acoustical nonlinearity," *Fizika Metallov I Metallovedenie*, 172-178.
- Norman, T. L., and Wang, Z. (1997). "Microdamage of human cortical bone: Incidence and morphology in long bones," *Bone* **20**, 375-379.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., Dickson, G. R., and Lee, T. C. (2000). "Visualisation of three-dimensional microcracks in compact bone," *Journal of Anatomy* **197**, 413-420.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., and Lee, T. C. (2002). "An improved labelling technique for monitoring microcrack growth in compact bone," *Journal of Biomechanics* **35**, 523-526.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., and Lee, T. C. (2003). "Microcrack accumulation at different intervals during fatigue testing of compact bone," *Journal of Biomechanics* **36**, 973-980.
- O'Brien, F. J., Taylor, D., and Lee, T. C. (2007). "Bone as a composite material: The role of osteons as barriers to crack growth in compact bone," *International Journal of Fatigue* **29**, 1051-1056.
- Payan, C., Garnier, V., and Moysan, J. (2010). "Effect of water saturation and porosity on the nonlinear elastic response of concrete," *Cement and Concrete Research* **40**, 473-476.

- Presbitero, G., O'Brien, F., Clive Lee, T., and Taylor, D. (2012). "Distribution of microcrack lengths in bone *in vivo* and *in vitro*," *Journal of Theoretical Biology*.
- Reifsnider, K. L., and Jamison, R. (1982). "Fracture of fatigue-loaded composite laminates," *International Journal of Fatigue* **4**, 187-197.
- Rho, J. Y., and Pharr, G. M. (1999). "Effects of drying on the mechanical properties of bovine femur measured by nanoindentation," *Journal of Materials Science: Materials in Medicine* **10**, 485-488.
- Ritchie, R. O., Buehler, M. J., and Hansma, P. (2009). "Plasticity and toughness in bone," *Phys. Today* **62**, 41-47.
- Schaffler, M., Pitchford, W., Choi, K., and Riddle, J. (1994). "Examination of compact bone microdamage using back-scattered electron microscopy," *Bone* **15**, 483-488.
- Schaffler, M. B., Choi, K., and Milgrom, C. (1995). "Aging and matrix microdamage accumulation in human compact bone," *Bone* **17**, 521-525.
- Sobelman, O. S., Gibeling, J. C., Stover, S. M., Hazelwood, S. J., Yeh, O. C., Shelton, D. R., and Martin, R. B. (2004). "Do microcracks decrease or increase fatigue resistance in cortical bone?," *Journal of Biomechanics* **37**, 1295-1303.
- Tai, K., Ulm, F. J., and Ortiz, C. (2006). "Nanogranular origins of the strength of bone," *Nano letters* **6**, 2520-2525.
- Ulrich, T. J., Johnson, P. A., Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., and Laugier, P. (2007). "Application of nonlinear dynamics to monitoring progressive fatigue damage in human cortical bone," *Applied Physics Letters* **91**.
- Van den Abeele, K., Carmeliet, J., Johnson, P., and Zinszner, B. (2002). "Influence of water saturation on the nonlinear elastic mesoscopic response in Earth materials and the implications to the mechanism of nonlinearity," *J. Geophys. Res* **107**, 2121.
- Van den Abeele, K., Le Bas, P., Van Damme, B., and Katkowski, T. (2009). "Quantification of material nonlinearity in relation to microdamage density using nonlinear reverberation spectroscopy: Experimental and theoretical study," *The Journal of the Acoustical Society of America* **126**, 963.
- Vashishth, D. (2004). "Rising crack-growth-resistance behavior in cortical bone: implications for toughness measurements," *Journal of Biomechanics* **37**, 943-946.
- Wasserman, N., Brydges, B., Searles, S., and Akkus, O. (2008). "In vivo linear microcracks of human femoral cortical bone remain parallel to osteons during aging," *Bone* **43**, 856-861.
- Weiner, S., and Wagner, H. D. (1998). "The material bone: structure-mechanical function relations," *Annual Review of Materials Science* **28**, 271-298.
- Zioupos, P. (2001). "Accumulation of in-vivo fatigue microdamage and its relation to biomechanical properties in ageing human cortical bone," *Journal of Microscopy-Oxford* **201**, 270-278.

Chapitre 6.

EVALUATION DE LA PROPAGATION D'UNE MICRO-FISSURE PAR SPECTROSCOPIE ULTRASONORE NON-LINEAIRE

De nombreuses études ont étudié la sensibilité des méthodes d'acoustique non-linéaires à l'endommagement induit par des tests en fatigue dans des matériaux aussi divers que le béton, les métaux ou les composites ((Frouin *et al.*, 1999; Van den Abeele and De Visscher, 2000; Cantrell and Yost, 2001; Van den Abeele *et al.*, 2001b; Lesnicki *et al.*, 2011), voir chapitre 3). Ces études ont permis d'établir qu'une modification de l'intégrité du matériau pouvait être associée à un changement de l'élasticité non-linéaire du milieu. L'état d'endommagement du matériau est souvent suggéré par un paramètre indirect comme la réduction du module élastique ou le nombre de cycles de fatigue (Cantrell, 2006; Zagrai *et al.*, 2008; Bentahar and El Guerjouma, 2009; Antonaci *et al.*, 2010). Rares sont les études ayant tenté d'établir un lien quantitatif entre les variations de la non-linéarité élastique et les caractéristiques effectives du micro-endommagement (densité de dislocations, densité de fissures ou leur longueur moyenne) induits par fatigue ou par test quasi-statique ((Van den Abeele *et al.*, 2001a; Van den Abeele *et al.*, 2009; Moreschi *et al.*, 2011). Le chapitre précédent, tirant partie des nouvelles possibilités de l'imagerie haute résolution par micro-tomographie par rayonnement synchrotron, était dédié à l'étude de la relation entre non linéarité élastique hystérétique et micro-endommagement osseux induit par fatigue. L'étude a permis d'identifier un lien statistique entre α_f d'une part et densité et longueur de fissures d'autre part. Une telle approche est potentiellement instructive, puisqu'elle présente l'avantage de pouvoir caractériser l'endommagement en volume (surface, volume, orientation des fissures) et d'établir un lien entre caractéristiques de l'endommagement et comportement non linéaire. En revanche, la taille réduite des volumes que l'on peut acquérir au synchrotron représentent une limite, en particulier lorsque l'endommagement n'est pas localisé, épars et non réparti de manière homogène dans l'échantillon testé.

Une vision complémentaire consiste à produire et contrôler un endommagement localement sous forme d'initiation et propagation contrôlée d'une unique fissure. Cette procédure est réalisée par un test mécanique de ténacité [en anglais « *toughness test* »]. Ce test de ténacité a été mis en œuvre dans les métaux et le béton (Donskoy *et al.*, 2001; Duffour *et al.*, 2006; Courtney *et al.*, 2008; Straka *et al.*, 2008; Zardan *et al.*, 2010) pour évaluer la possibilité de détecter un endommagement localisé par des techniques d'acoustique non-linéaire.

Dans ce chapitre, nous utiliserons le test de ténacité pour initier et propager une fissure dans des échantillons d'os cortical calibrés. L'objectif principal sera de tester la sensibilité de la technique NRUS à la propagation contrôlée d'une fissure localisée. Nous nous attacherons à établir un lien opérationnel entre un paramètre acoustique non-linéaire (le paramètre non-linéaire élastique non classique α_f) et les caractéristiques géométriques de la fissure (longueur, orientation).

6.1 Matériels et méthodes

6.1.1 Préparation des échantillons et protocole de mesure

Quatorze éprouvettes d'os cortical humain ont été préparées à partir de diaphyses fémorales de quatre donneurs de sexes féminin et masculin, âgés de 79.4 ± 3.9 ans. Les fémurs ont été obtenus lors d'une collecte multi-organes. La collecte des échantillons a été approuvée par le comité éthique du Département Universitaire d'Anatomie de Rockefeller (Lyon, France). Les donneurs ou leur gardien légal ont consenti, par écrit, vouloir donner leurs organes pour la science, en accord avec les clauses établies par le code français de la santé publique. Les fémurs ont été coupés à l'unité INSERM 1033 sur scie circulaire à disque diamanté (Isomet 4000, Buehler, GmbH, Düsseldorf, Allemagne) en parallélépipèdes de $50 \times 4 \times 2 \text{ mm}^3$, puis sur scie à fil diamanté (ESCIL W3000, Chassieu, France) (Fig.1) en parallélépipèdes de $50 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$ avec une entaille en partie centrale de $600 \mu\text{m}$ de profondeur. Les baguettes ont été ensuite dégraissées selon le protocole décrit par Granke (Granke *et al.*, 2011) et stockés à -20°C jusqu'au début de l'étude expérimentale.

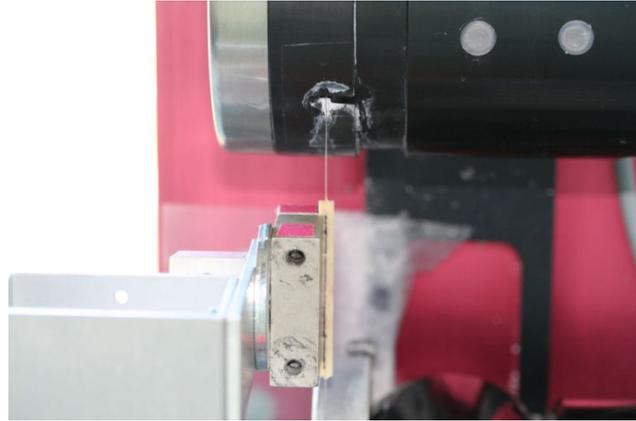


Figure 1 : Illustration de la découpe au fil diamant (réalisée à l'unité INSERM 1033)

La densité apparente des échantillons secs (ρ_{dry}) a été mesurée à partir du volume et de la masse des échantillons. Les échantillons d'os sont déshydratés à 37°C pendant une nuit dans une chambre climatique (Memmert GmbH HCP 108, Schwabach, Allemagne) à une humidité relative de 15% et en présence de dessicant. La procédure de déshydratation et de réhydratation n'affecte pas les propriétés de l'os car les molécules de collagène restent intactes (Currey, 1988; Rho and Pharr, 1999).

Avant de commencer le protocole de mesure, nous avons vérifié sur un échantillon que la présence de l'entaille ne modifie ni les modes de résonance (la fréquence de résonance reste identique avant et après l'entaille), ni la non-linéarité des éprouvettes (les paramètres NRUS avant et après l'entaille sont identiques). Le protocole de mesure commence tout d'abord par l'estimation des paramètres acoustiques initiaux de tous les échantillons grâce la technique NRUS optimisée (décrite dans le chapitre 4). Les éprouvettes d'os subissent ensuite un test de ténacité afin d'initier et propager une fissure à partir de l'entaille. La propagation de la fissure est contrôlée au mieux pour éviter la rupture des éprouvettes. La mesure NRUS est répétée à la fin du test de ténacité. Une fois les mesures terminées, la longueur de la fissure est estimée avec précision par tomographie haute résolution à rayonnement synchrotron (SR- μ CT).

6.1.2 Mesures NRUS

Le contexte théorique sur lequel est basé la technique NRUS est décrit en détail dans le paragraphe 2.2.1 du chapitre 2. Nous rappellerons seulement que le paramètre non-linéaire non classique élastique α_f est égal au coefficient de proportionnalité entre l'amplitude de déformation et la variation de la fréquence de résonance de l'échantillon (voir Eq.2.9 du paragraphe 2.2.1 du chapitre 2), tandis que le paramètre non-linéaire non classique dissipatif

α_Q est égal au coefficient de proportionnalité entre l'amplitude de déformation et la différence de facteur de perte (Q^{-1}) de l'échantillon (voir Eq.2.10 du paragraphe 2.2.1 du chapitre 2).

Le principe de la mesure a été largement décrit dans le chapitre 4. Rapidement, un émetteur piézo-électrique (Fuji Ceramics Corporation, Yamamiya, Japon) associé à une masse est collé à l'extrémité de l'échantillon. La masse permet de s'assurer que les modes de vibration de la baguette sont des modes issus des conditions aux limites encastrée-libre. Ainsi grâce à la position de l'émetteur piézo-électrique et à la forme parallélépipédique des baguettes, le premier mode de barreau est excité lors des mesures NRUS. Pendant l'expérimentation, l'acquisition des données consiste à mesurer les courbes de résonance du premier mode de barreau pour des amplitudes d'excitation croissante. La fréquence de résonance est ensuite extraite pour chaque niveau de déformation. L'amplitude de déformation dynamique maximale ε est calculée à partir du déplacement particulaire longitudinal U à l'extrémité de l'échantillon à l'aide d'un vibromètre laser (LSV 1MHz, SIOS, Ilmenau, Germany) et de l'équation suivante :

$$\varepsilon = \frac{\delta U}{\delta x} = U * k = U * \frac{2\pi}{4L} \quad (6.1)$$

Où k est le nombre d'onde et L la longueur de l'échantillon.

Les paramètres non-linéaires α_f et α_Q ont été évalués sur des échantillons déshydratés avant et après endommagement à partir de mesures NRUS effectuées dans une chambre climatique qui permet de maintenir les échantillons à température constante ($37^\circ\text{C} \pm 0.1^\circ\text{C}$) et l'humidité relative constante ($15\% \pm 5\%$). Pour tester l'influence de l'hydratation de l'os cortical, les paramètres non-linéaires ont été aussi mesurés par NRUS sur les éprouvettes endommagées hydratées. Pour cela, chaque échantillon est préalablement placé dans un tube contenant de l'eau distillée à 37°C pendant 2h sous vide. L'échantillon est immergé sur les $\frac{3}{4}$ de sa longueur, le $\frac{1}{4}$ restant dont l'extrémité est collée à la pastille piézo-électrique, est maintenu hors de l'eau. Avec cette procédure, nous évitons la détérioration du collage entre la pastille piézo-électrique et la baguette d'os susceptible d'engendrer des non-linéarités artefactuelles. La mesure en condition humide est effectuée après la mesure en condition sèche. La chambre climatique est saturée en vapeur d'eau avec une humidité relative $> 80\%$. Puis l'échantillon est asséché avant d'être à nouveau mesuré en condition sèche. Si la non-linéarité est la même qu'avant l'hydratation, nous validons la non-linéarité mesurée en

condition humide car elle provient uniquement de l'os, le collage n'ayant pas subi de dégradation. Cette procédure est répétée jusqu'à la validation des paramètres α_f et α_Q de tous les échantillons en condition humide.

En plus des paramètres non-linéaires α_f et α_Q le module ultrasonore est calculé à partir de la fréquence de résonance du premier mode de compression des éprouvettes d'os cortical sèches excitées en condition encasturé-libre. Nous faisons l'hypothèse que nous sommes en condition de mode de résonance de barreau car la section est très petite devant la longueur L . Ainsi, nous pouvons extraire le module d'Young ultrasonore (E_{us}) à partir de la fréquence de résonance f du premier mode de compression et de la densité apparente de l'échantillon sec ρ_{dry} :

$$E_{us} = \rho_{dry}(f4L)^2 \quad (6.2)$$

6.1.3 Test de ténacité en flexion 4 points

L'émetteur piézo-électrique attaché à l'échantillon pour les mesures NRUS est enlevé avant le test de ténacité. Les échantillons sont réhydratés dans une solution saline pendant une nuit entière. Les éprouvettes entaillées sont ensuite soumises à une expérimentation en flexion 4-points, afin d'induire une fissure en fond d'entaille. Le test de résistance à la fracturation est réalisé sur une machine de test servo-hydraulique (INSTRON, 8802, High Wycombe, Angleterre) avec un montage de flexion 4 points articulé (identique au chapitre 5), d'une cellule de charge de 1kN (précision de 0.5%) et du capteur de déplacement machine (précision de 1%). Les essais sont effectués dans l'air, à température ambiante, sur les échantillons préalablement hydratés. Le test est piloté en déplacement avec une vitesse de déplacement de 0.05mm/s avec une précharge de -4N.

Une caméra rapide (Photron SA3, Japon) avec objectif 105 mm F2.8 DG macro (SIGMA, Japon) est utilisée (Fig.2), afin de filmer une des deux faces de l'éprouvette au cours du chargement. L'objectif est de pouvoir suivre la propagation de la fissure et stopper le chargement avant la fracture.

Comme l'os est un matériau viscoélastique, la mécanique linéaire-élastique de la rupture (Linear Elastic Fracture Mechanics LEFM) n'est pas bien adaptée à l'évaluation de la ténacité. Nous avons donc privilégié les paramètres issus de la mécanique élasto-plastique de la rupture (Post Yield Fracture Mechanics PYFM), qui prend en considération le cas des

matériaux ductiles auxquels la LEFM ne s'applique pas. En effet, l'os cortical est un matériau dont les mécanismes inélastiques (plastiques) contribuent largement à sa ténacité intrinsèque. Dans ce cas, l'un des paramètres privilégiés est l'intégrale de contour J : $J = J_{el} + J_{pl}$ (Yan *et al.*, 2007; Koester *et al.*, 2008; Ritchie *et al.*, 2008). J_{pl} correspond à la contribution plastique. Elle est calculée à partir de l'aire A_{pl} sous la courbe charge-déplacement du vérin (Koester *et al.*, 2011) et d'après la norme E1820 (ASTM, 2008a) (voir Fig.3) :

$$J_{pl} = \frac{2A_{pl}}{B * (W - a)} \quad (6.3)$$

Avec a est la longueur de l'entaille, W est la largeur de l'éprouvette et B est l'épaisseur de l'éprouvette.



Figure 2 : Configuration de l'expérimentation en flexion 4-points avec une caméra rapide (Photron SA3) (les données issues de la 2^{ème} caméra ne sont pas exploitables).

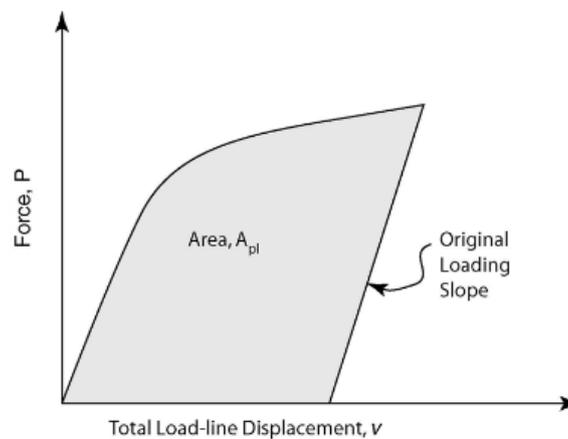


Figure 3: Evaluation de l'aire sous la courbe charge/déplacement du vérin (A_{pl}) telle que le définit la norme E1820. Extrait de (ASTM, 2008a)

La contribution élastique J_{el} est calculée à partir du facteur d'intensité de contrainte K (paramètre élastique):

$$J_{el} = \frac{K_c^2(1 - \nu^2)}{E} \quad (6.4)$$

Avec K_c le facteur d'intensité de contrainte (exprimé en $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$), ν le coefficient de Poisson et E le module d'Young de l'éprouvette. Dans cette étude nous ferons l'hypothèse que l'os cortical est isotrope et nous prendrons un coefficient de Poisson ν identique pour toutes les éprouvettes et égal à 0.3 (Reilly and Burstein, 1975). Cette approximation affecte peu la valeur de J_{el} qui est surtout dépendante de la valeur au carré de K_c qui peut varier d'un ordre de grandeur et dans une moindre mesure du module d'Young. Le module d'Young est quant à lui estimé par ultrasons (E_{us}) sur les éprouvettes intactes. Nous avons montré dans l'étude précédente qu'il était significativement corrélé au module d'Young mécanique et que pour des fréquences ultrasonores de l'ordre du kHz, la valeur de E_{us} était en moyenne supérieure de 33% à la valeur mesurée par test mécanique (voir annexe 2).

Enfin, le facteur d'intensité de contrainte K peut se calculer selon la norme ASTM C-1421 (ASTM, 2008b; Kulin *et al.*, 2011) pour la flexion 4 points :

$$K_c = f * \left[\frac{P * (S_0 - S_1) * 10^{-6}}{B * W^{3/2}} \right] \left[\frac{3 * (a/W)^{1/2}}{2 * (1 - a/W)^{3/2}} \right] \quad (6.5)$$

Avec S_0 et S_1 , les dimensions entre appuis supérieurs et inférieurs (i.e. $S_0 = 20\text{mm}$ et $S_1 = 40\text{mm}$). P correspond à la force appliquée pour avoir un déplacement constant de 0.05mm/s . Le terme $f(a/W)$ est un facteur d'étalonnage lié à la géométrie de la baguette. Il se calcule suivant l'équation ci-dessous :

$$f(a/W) = 1.9887 - 1.326 * (a/W) - \frac{[3.49 - 0.68 * (a/W) + 1.35 * (a/W)^2](a/W)[1 - (a/W)]}{[1 + (a/W)^2]} \quad (6.6)$$

Afin de pouvoir comparer les résultats obtenus à partir de l'intégrale de contour J , Koester (Koester *et al.*, 2008) propose un facteur d'intensité de contraintes inélastiques équivalent K_j , calculé à partir de J et du module d'Young E :

$$K_j = \sqrt{J E} \quad (6.6)$$

6.1.4 Imagerie haute résolution par rayonnement synchrotron 3D (SR- μ CT)

A la fin de l'essai de ténacité, l'entaille de chaque éprouvette d'os est imagée en 3-D à haute résolution par micro-tomographie à rayonnement synchrotron (SR- μ CT) au European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) de Grenoble (France) sur la ligne ID 19 (Larrue *et al.*, 2011). L'énergie photonique employée est de 25KeV et la taille des régions d'intérêt (ROI) est de $2.8 \times 2.8 \times 1.96 \text{mm}^3$ avec une taille de voxel de $1.4 \mu\text{m}^3$. Après recadrage, les dimensions de la ROI sont égales à $2.15 \times 1.75 \times 1.75 \text{mm}^3$ et couvrent l'entaille, le fond d'entaille et la propagation de la fissure à partir du fond d'entaille sur toute la largeur W de l'éprouvette.

L'évaluation de la longueur de la fissure est réalisée sur des **coupes 2-D longitudinales**. Pour cela 6 coupes 2D longitudinales d'épaisseur $14 \mu\text{m}$ et de dimension $2.15 \times 1.75 \text{mm}^2$, régulièrement espacées par un intervalle de $350 \mu\text{m}$, ont été extraites des volumes reconstruits. Chacune de ces coupes sont constituées par l'empilement et la moyenne de 10 coupes élémentaires adjacentes d'épaisseur $1.4 \mu\text{m}$ chacune (Fig.4), permettant ainsi d'abaisser le niveau de bruit et donc d'améliorer le contraste entre les fissures et la matrice osseuse.

La longueur de la fissure Cr.Le est estimée comme la moyenne de la longueur de la fissure obtenue à partir de chacune des 6 coupes de la ROI. Nous distinguons la fissure principale qui part de l'entaille (en rouge sur la Fig.5b), des microfissures périphériques (en cyan sur la Fig.5b) qui ne sont pas directement rattachées à la fissure principale. Afin de tenir compte des sinuosités de la fissure sur chacune des coupes, la longueur effective de la fissure est estimée par portions quasi-linéaires (Fig.6a). A chaque portion correspond un vecteur de points caractérisé par une longueur l et un angle θ . La longueur de la fissure estimée sur chaque coupe correspond à la somme des longueurs l . L'angle moyen de chaque fissure principale dans un repère constitué d'un axe longitudinal (direction des ostéons) et d'un axe vertical (direction de l'entaille) correspond à l'orientation du vecteur allant d'une extrémité à l'autre de la fissure. Les longueurs ont été mesurées manuellement par un seul expérimentateur à l'aide du logiciel *ImageJ* (NIH, USA) et du plugin *NeuronJ* (Erik Meijering, Pays-bas). La longueur de la fissure principale projetée à 90° (Cr.Le.Proj) correspond à la longueur de fissure orientée globalement dans la direction de l'entaille, c'est-à-dire perpendiculairement à la direction de l'onde de compression ultrasonore. La longueur Cr.Le.Proj a été calculée en faisant la somme de tous les vecteurs de longueur l (associés à la fissure principale) projetés à 90° (Fig.6b). La longueur d'un vecteur projeté est calculée en

multipliant sa longueur l par le sinus de son angle θ . La porosité apparente de l'os correspond aux pores (canaux de Havers et de Wolkman et cavité de résorption osseuse). Leur structure est délimitée par les pixels de faible niveau de gris sur les coupes SR- μ CT. La segmentation des pores consiste à seuiller l'image en ne gardant que les pixels dont le niveau de gris est inférieur à 100 (valeur choisie de manière heuristique). Pour supprimer les pixels isolés (généralement du bruit), une ouverture (érosion puis dilatation) est appliquée à l'image binaire issue du seuillage. La porosité correspond au nombre de pixels segmentés par rapport à la surface totale de l'os (en pixel).

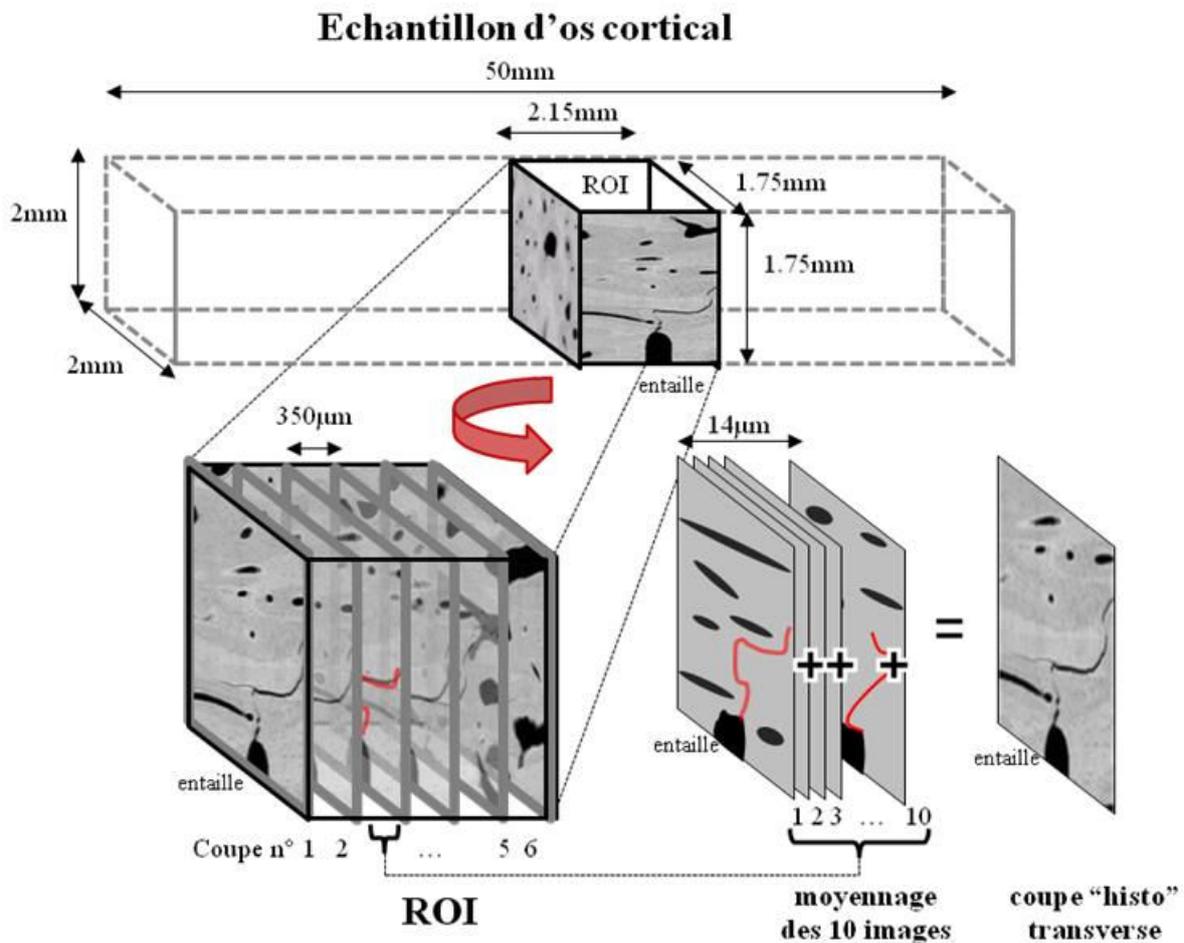


Figure 4 : L'acquisition SR- μ CT de la ROI se fait au niveau de l'entaille. De la ROI sont extraites 6 piles de 10 images (=14 μ m d'épaisseur) qui seront moyennées pour donner 6 coupes 2-D longitudinales. Les 6 coupes de la ROI sont espacées de 350 μ m.

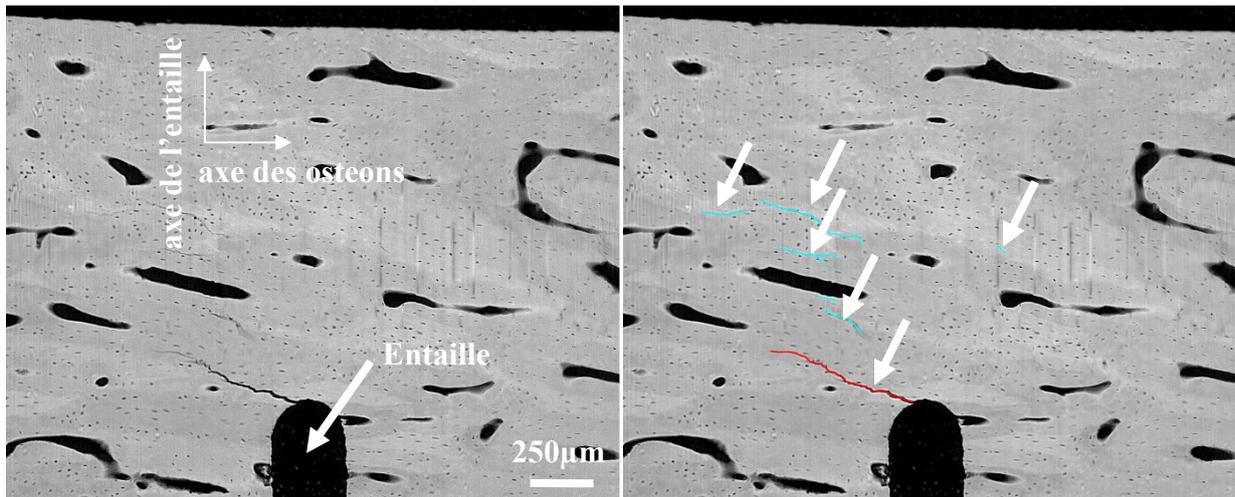


Figure 5 : Exemple de coupe 2-D longitudinale avec fond d'entaille, une fissure principale (en rouge) et des fissures périphériques (en cyan), avant (a) et après (b) segmentation manuelle à l'aide du logiciel ImageJ et du plugin NeuroneJ. (échantillon 215_2009_2p1)

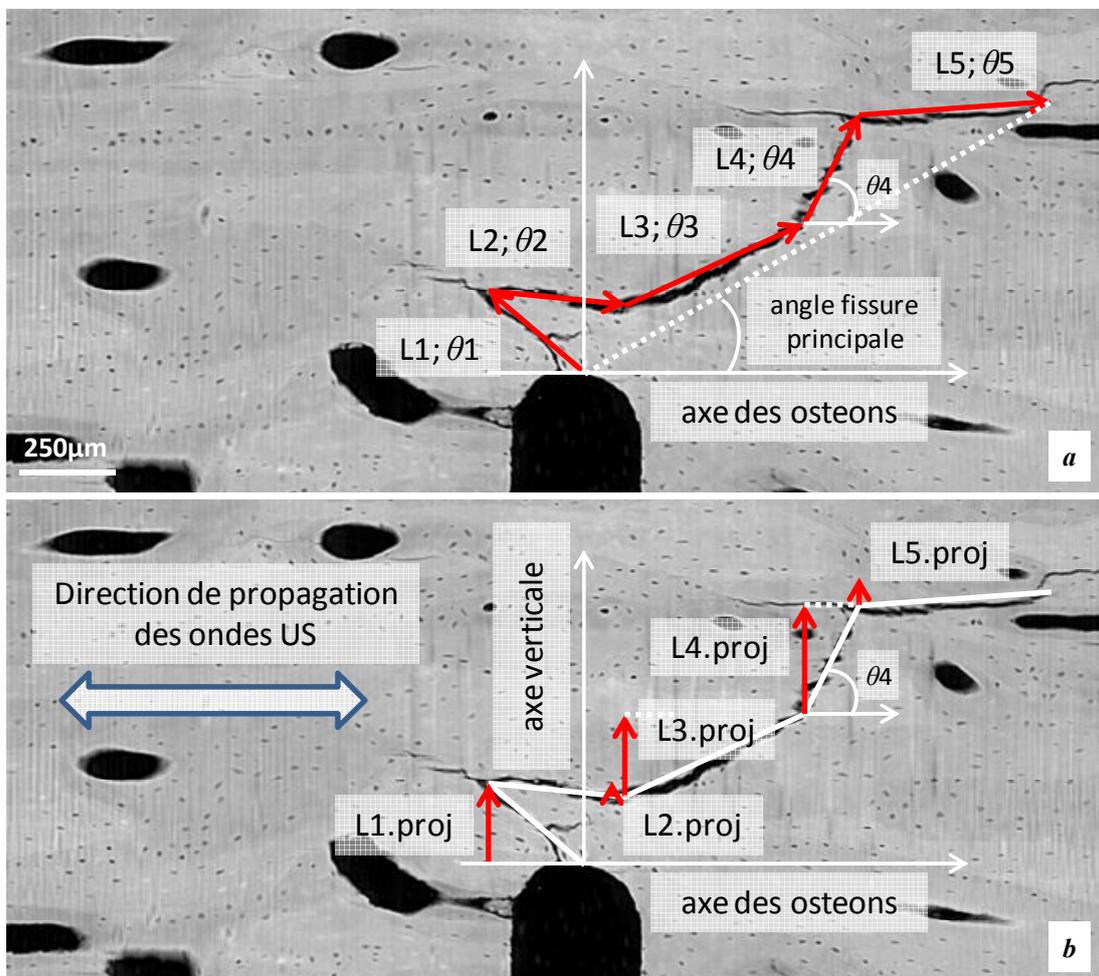


Figure 6 : (a) Découpage de la fissure principale en 5 vecteurs, de longueur L_n et d'angle θ_n . La longueur de la fissure $Cr.Le = L1+L2+L3+L4+L5$. L'angle moyen de la fissure principale correspond à l'angle de la droite passant par les extrémités de la fissure. (b) La longueur de la fissure projetée sur l'axe verticale correspond à la somme des 5 vecteurs projetés selon le même axe. $Cr.Le.Proj=L1.proj+L2.proj+L3.proj +L4.proj+L5.proj$ (avec $L_n.proj = L_n*\sin(\theta_n)$).

6.1.5 Analyse des données

Les analyses statistiques ont été réalisées grâce au module *statistics 7.6* de *Matlab 7.8* (Mathworks, Natick, MA, USA). Afin de déterminer l'influence du test de ténacité sur le comportement non linéaire, un test non paramétrique de Wilcoxon (Signed-Rank) est réalisé pour comparer le coefficient non linéaire mesuré sur les échantillons en conditions « sec » avant et après propagation de fissure. L'influence de l'humidité sur le comportement non linéaire est quant à elle évaluée avec un test non paramétrique de Wilcoxon (Signed-Rank) sur les données obtenues après propagation de fissure sur les échantillons en conditions « sec » et « humide ». L'analyse de la variation (ANOVA) de la longueur de la fissure Cr.Le intra et inter échantillons est réalisée à l'aide du test non paramétrique de Kruskal-Wallis car la distribution de Cr.Le n'est pas normale. Enfin la relation entre la longueur de la fissure (Cr.Le ou Cr.Le.Proj) et le paramètre non-linéaire élastique α_f a été obtenue par un test de corrélation de Pearson (après élimination des outliers). Avant d'effectuer ce test, nous nous sommes assuré que la distribution des données (longueurs (Cr.Le et Cr.Le.Proj) et paramètre non-linéaire élastique α_f sous les outliers) analysées était normale par un test de Shapiro-Wilk. Le niveau de significativité est mesuré avec une valeur de $p < 0.05$.

6.2 Résultats

6.2.1 Estimation de la longueur de la fissure

Les longueurs moyennes des fissures et les angles associés sont regroupés dans la Table I ci-après.

La longueur de la fissure principale Cr.Le varie entre $6 \pm 14 \mu\text{m}$ et $2277 \pm 533 \mu\text{m}$. Au cours de l'analyse, nous avons observé des variations importantes de la longueur de la fissure sur les différentes coupes longitudinales de chaque éprouvette. Cependant la variabilité inter-échantillon de Cr.Le reste plus grande que la variabilité intra-échantillon de Cr.Le ($P < 0.0001$, $F = 59$). L'angle moyen de la fissure principale avec l'axe des ostéons varie entre 13° et 81° avec une valeur moyenne de $27 \pm 19^\circ$. La longueur projetée de la fissure sur l'axe de l'entaille (perpendiculaire à l'axe des ostéons) varie entre $6 \mu\text{m}$ et $664 \mu\text{m}$.

Notons que l'échantillon le plus endommagé (149_2009_1A1) a une fissure particulièrement longue $2277 \mu\text{m}$ presque parallèle aux ostéons (17°), tandis que l'échantillon le moins endommagé (215_2009_4P2) a une fissure très courte, en moyenne $6 \mu\text{m}$, qui est se situe dans l'axe de l'entaille (81°), perpendiculaire aux ostéons (Fig. 7).

Enfin deux échantillons (149_2009_1A2 et 215_2009_1A1) ont été rompus pendant le test de ténacité. La longueur de leur fissure n'a donc pas pu être mesurée.

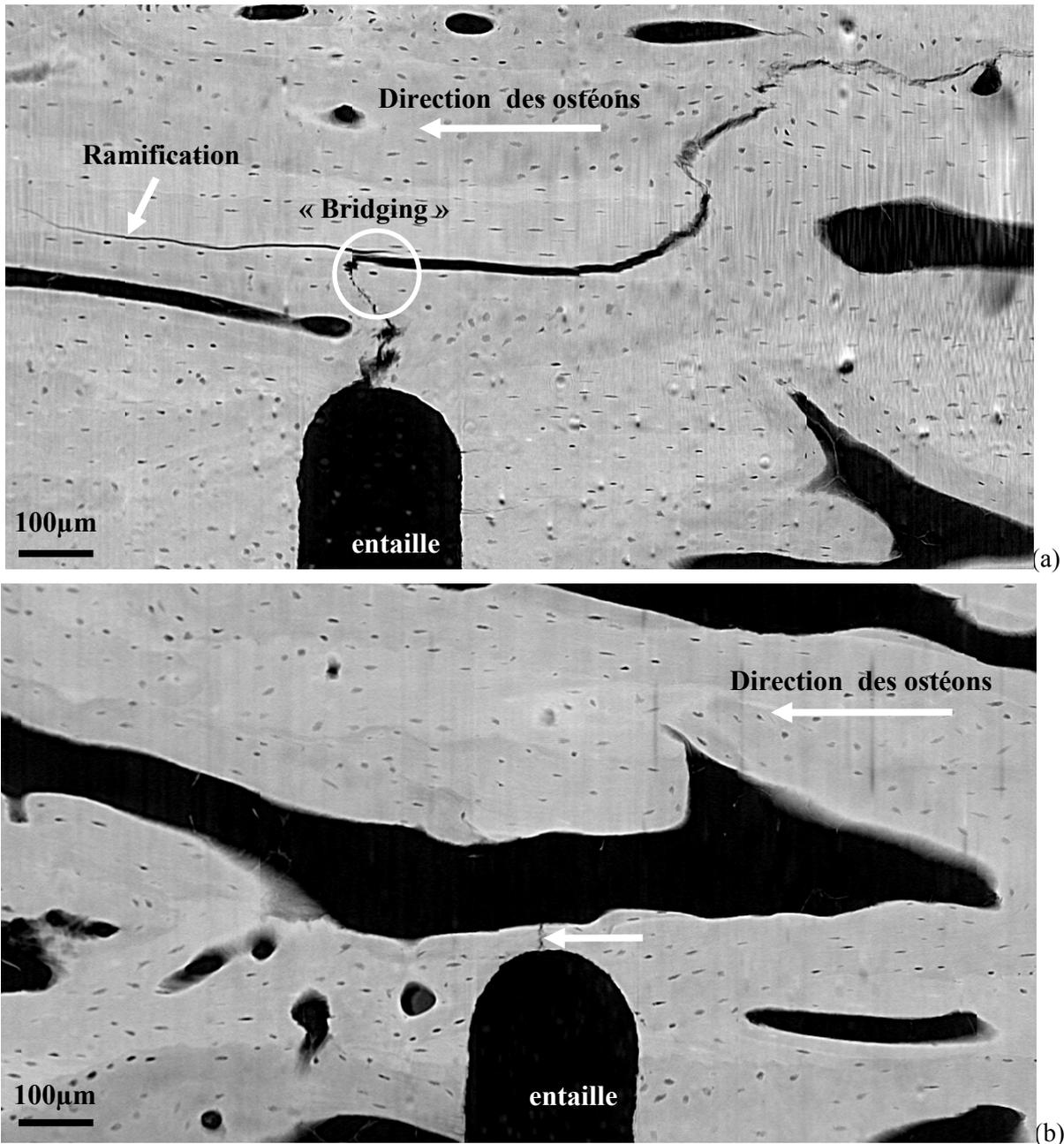


Figure 7 : Exemple de fissures (zoom) ; (a) échantillon (149_2009_1A1) présentant la fissure la plus longue. Notons la déviation de la fissure après environ 100µm de propagation dans l'axe de l'entaille ; (b) échantillon (215_2009_4P1) ayant la moins longue fissure.

6.2.2 Ténacité de l'os cortical humain

Au cours des essais de ténacité, seuls deux échantillons (149_2009_1A2 et 215_2009_1A1) se sont fracturés lors de la progression de la fissure. Pour les douze autres échantillons (n=12), la propagation contrôlée de la fissure a permis de stopper le test de

ténacité à différents stades de fissuration. Les valeurs des paramètres de ténacité sont regroupées dans la Table I. Ainsi J_{el} varie entre 0.35 et 8.41kPa.m, J_{pl} varie entre 1.12 et 3.20, J varie entre 1.47 et 10.83kPa.m, K_c varie entre 2.71 et 12.29MPa.m^{1/2} et enfin K_j varie entre 5.26 et 14.95MPa.m^{1/2}.

Notons que ces paramètres ne correspondent ni aux paramètres d'initiation de la fissure (qui devraient être évalués au démarrage de la fissure), ni aux paramètres juste avant rupture. Les valeurs de ces paramètres correspondent à la ténacité associée à la longueur finale de la fissure qui est différente suivant les échantillons. Pour cette raison, aucune corrélation n'a été trouvée entre les paramètres de ténacité et les caractéristiques architecturales (densité apparente et porosité) ou mécanique (module d'Young ultrasonore initiale) des échantillons.

6.2.3 Evaluation de la Non-linéarité par NRUS

La valeur moyenne initiale de α_f égale à -5.5 ± 1.5 (min : -4.4 ; max : -10.0) (Table I) est cohérente avec celle qui a été obtenue sur les autres séries d'échantillons présentées aux chapitre 4 & 5

Le comportement non linéaire (α_f et α_Q) est plus marqué après propagation de la fissure (Fig 8). Deux échantillons manifestent une augmentation très importante de α_f (α_f de l'échantillon 149_2009_1A1 varie de -4.9 à -296.7 ; α_f de l'échantillon 215_2009_2P2 varie de -5.8 à -120.5) (Table I). Pour les autres échantillons, la différence des valeurs moyennes de α_f mesurées avant et après propagation de fissure est significative ($p < 0.006$) (Fig.8a), avec des valeurs qui se situent entre -4.0 et -21.3. Enfin, pour ces mêmes échantillon, la valeur moyenne de α_f mesurée en condition hydratée est significativement différente de celle mesurée en condition sèche ($p < 0.002$) (Fig.8a). Les valeurs du paramètre α_f en condition hydratée varient entre -6.2 et -37.0.

Comme pour α_f , la différence des valeurs moyennes de α_Q mesurées avant ($\alpha_Q = -1.9 \pm 0.8$) et après ($\alpha_Q = 2.3 \pm 1.1$) propagation de fissure est significative ($p = 0.02$). Les valeurs α_Q varient entre 0.67 et 3.08 quand les échantillons sont intacts. Après le test de ténacité, le paramètre α_Q varie entre 1.5 et 3.5. La valeur moyenne de α_Q mesurée en condition hydratée ($\alpha_Q = 3.8 \pm 2.1$) est significativement supérieure à celle mesurée en condition sèche ($\alpha_Q = 2.3 \pm 1.1$) ($p < 0.001$), avec des valeurs variant entre 1.5 et 6.7 (Fig.8b). (Table I). Notons que les deux échantillons les plus non-linéaires (149_2009_1A1 et 215_2009_2P2) ne présentent

plus de relation linéaire entre l'amplitude de déformation et la variation du facteur de perte après l'endommagement. Il n'est donc pas possible d'extraire de paramètre α_Q . Ces deux échantillons n'ont donc pas été pris en compte pour les tests statistiques qui suivent.

Les valeurs α_f mesurées en condition sèche et humide sont bien corrélées ($R=0.78$, $p<0.01$, test de Pearson) tandis que les valeurs de α_Q ne le sont pas ($p=0.08$).

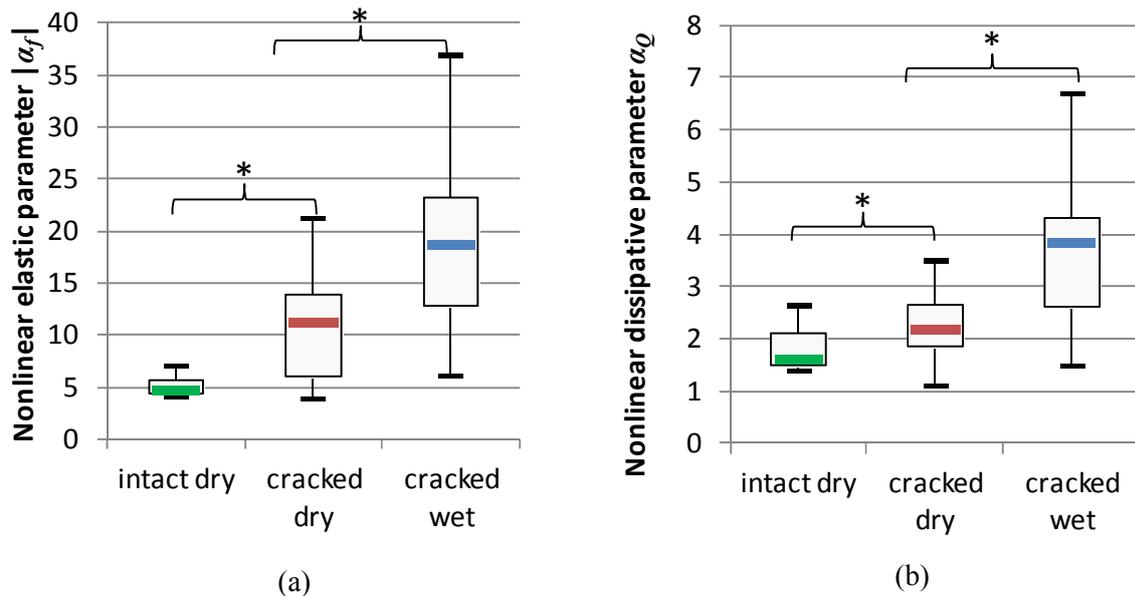


Figure 8 : Paramètres non-linéaires élastique α_f (a) et dissipatif α_Q (b) avant et après le test de ténacité, mesurés en condition sèche et hydratée. Les valeurs des deux échantillons les plus non-linéaires (149_2009_1A1 et 215_2009_2P2) n'ont pas été incluses pour plus de clarté.

Pour finir, lorsque nous comparons les paramètres non-linéaires α_f et α_Q obtenue après le test de ténacité avec la longueur de la fissure Cr.Le (Fig.9, tous les échantillons ; Fig.10, 2 outliers éliminés), nous obtenons une corrélation significative (Table II). Les données semblent suggérer une variation du paramètre α_f de type exponentiel, cependant le nombre d'échantillons est trop faible pour confirmer cette tendance. Nous pouvons remarquer une corrélation sensiblement meilleure avec la longueur de fissure projetée sur l'axe de l'entaille perpendiculaire à l'axe des ostéons (Cr.Le.Proj) qu'avec la longueur totale de la fissure (Cr.Le) (Table II).

Nom des échantillons	Architecture		Ultrasons (sec)		Biomécanique (hydraté)					Fissure par SR- μ CT			Paramètre élastique non-linéaire α_f			Paramètre dissipatif non-linéaire α_Q		
	ρ_{dry} [g/cm ³]	Porosité [%]	E_{US} initial [kPa]	E_{US} final [kPa]	J_{el} [kPa.m]	J_{pl} [kPa.m]	$J=J_{pl}+J_{el}$ [kPa.m]	K_c [MPa.m ^{1/2}]	K_j [MPa.m ^{1/2}]	Cr.Le [μm]	angle [°]	Cr.Le.Proj à 90° [μm]	α_f initial sec	α_f final sec	α_f final hydraté	α_Q initial sec	α_Q final sec	α_Q final hydraté
149_2009_1A1	1909	6.2	22570	21453	6.09	2.09	8.17	12.29	13.58	2277±533	17	664	-4.9	-296.7	-217.6	1.8	saturation	saturation
149_2009_1A2	1987		22773		rompu					rompu			-4.4	rompu		1.6	rompu	
213_2009_6M1	1778	11.0	18808	19761	0.35	1.12	1.47	2.71	5.26	65±123	14	16	-5.5	-4.0	-6.2	2.1	2.0	1.5
213_2009_6M2	1867	7.8	21625	22205	0.54	1.17	1.71	3.58	6.07	208±120	33	112	-6.3	-10.8	-19.7	2.2	2.7	3.7
215_2009_1A1	1856		20979		rompu					rompu			-5.0	rompu		1.4	rompu	
215_2009_1A2	1886	7.1	22347	22213	0.58	3.20	3.78	3.79	9.19	341±170	38	209	-4.1	-21.3	-21.5	1.6	2.7	4.0
215_2009_2P1	1847	8.5	21003	20562	2.41	2.21	4.61	7.45	9.84	738±271	26	318	-4.4	-20.2	-37.0	1.7	3.5	6.7
215_2009_2P2	1759	11.7	20635	19703	8.41	2.42	10.83	13.81	14.95	917±318	20	315	-5.8	-120.5	-119.1	0.7	saturation	saturation
215_2009_3P1	1744	12.2	19866	19795	0.76	1.56	2.32	4.06	6.79	104±60	21	37	-4.5	-6.3	-14.6	1.6	1.9	4.3
215_2009_3P2	1635	16.2	17455	17499	7.10	2.00	9.10	11.67	12.60	192±164	42	128	-7.1	-11.5	-17.5	1.5	2.4	2.0
215_2009_4P1	1762	11.6	20841	21019	0.47	1.44	1.91	3.28	6.31	6±14	81	6	-5.0	-5.6	-7.4	2.6	1.1	2.8
215_2009_4P2	1744	12.2	20418	20400	0.35	1.48	1.83	2.79	6.11	475±228	25	203	-4.4	-11.8	-28.7	1.6	1.8	4.5
230_2009_1A1	1877	7.4	21474	21298	0.48	1.69	2.17	3.36	6.82	547±431	13	126	-5.3	-16.0	-23.0	2.2	2.6	4.3
230_2009_1A2	1871	7.6	21868	21526	0.58	1.58	2.16	3.74	6.87	618±205	14	147	-10.0	-14.5	-17.8	3.1	2.6	4.3
Moyenne	1823	10.0	20904	20619	1.91	1.81	3.72	5.53	8.34	572	27	196	-5.5	-44.9	-44.2	1.9	2.3	3.8
Ecart type	90	3.0	1463	1322	2.75	0.62	3.06	3.94	3.24	636	19	189	1.5	85.4	67.7	0.8	1.1	2.1

Table I : Densité apparente (ρ_{dry}), porosité, module d'Young ultrasonore E_{US} et paramètres de ténacité des échantillons d'os cortical humain : J_{el} , l'intégrale de contour élastique, J_{pl} l'intégrale de contour inélastique (i.e. plastique), K_c le facteur d'intensité de contrainte linéaire-élastique et K_j le facteur d'intensité de contrainte élasto-plastique. Paramètres géométriques de la fissure primaire (longueur moyenne Cr.Le, angle et longueur moyenne projetée à 90° Cr.Le.Proj). Paramètres non-linéaires élastique α_f et dissipatif α_Q avant et après le test de ténacité, mesurés en condition sèche et hydratée.

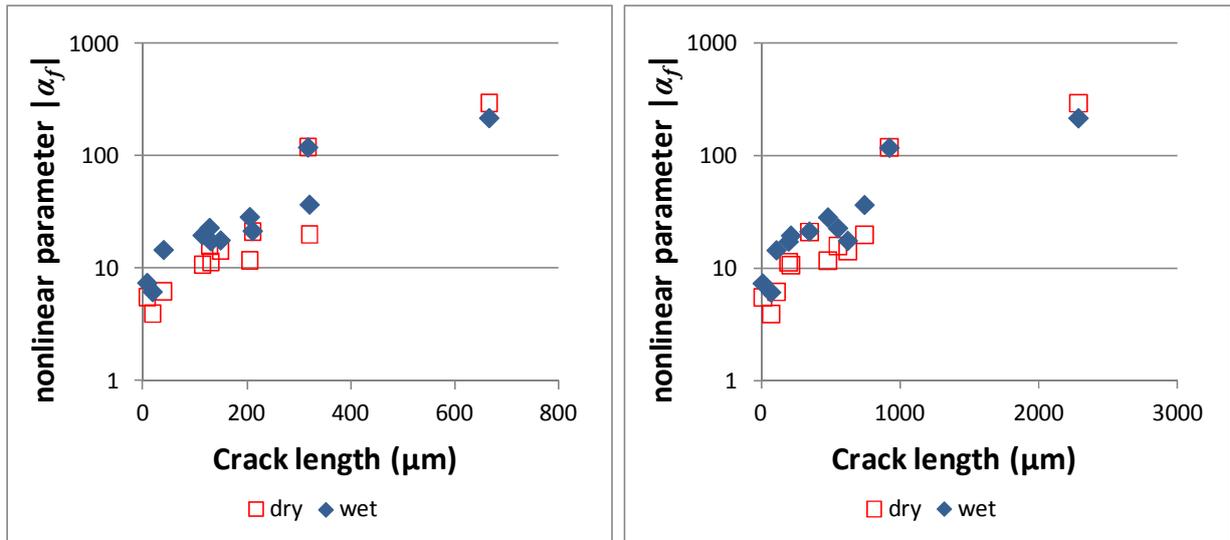


Figure 9 : Variation du paramètre non-linéaire élastique α_f en fonction de la longueur de la fissure (totale (a) ou projetée (b)). Tous les échantillons sont représentés.

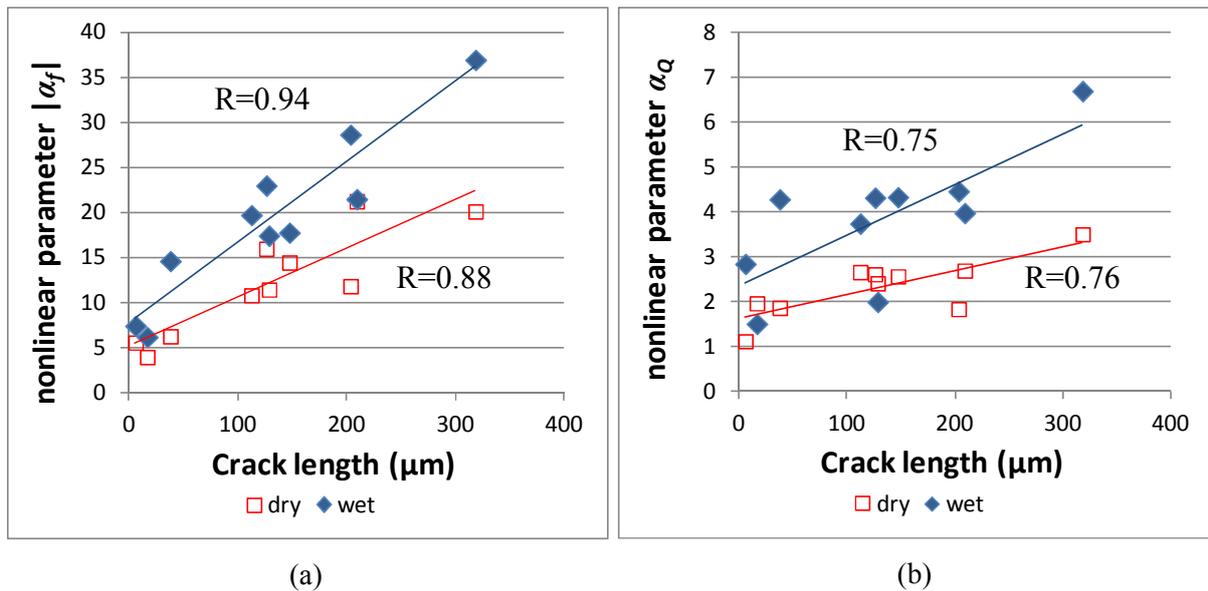


Figure 10 : Corrélation entre les paramètres non-linéaire élastique α_f (a) et dissipatif α_Q (b) et la longueur de la fissure projetée à 90° (Cr.Le.Proj). Deux outliers non représentés.

	<i>Cr.Le</i>	<i>Cr.Le.Proj</i> (\perp <i>osteons</i>)
α_f sec	R= 0.79 p<0.01	R= 0.88 p<0.001
α_f hydraté	R= 0.84 p<0.005	R= 0.94p<0.001
α_Q sec	R= 0.71 p=0.02	R= 0.76 p=0.01
α_Q hydraté	R= 0.79 p<0.01	R= 0.75 p=0.01

Table II : Corrélation (test de Pearson) entre les paramètres non-linéaires α_f et α_Q et la longueur de la fissure. Le test est effectué sur un sous-ensemble (n=10) ne contenant pas les deux échantillons les plus non-linéaires (149_2009_1A1 et 215_2009_2P2)

Notons que le module élastique (E_{us}), à l'inverse des paramètres non linéaires, ne varie pas de manière significative (Test de Wilcoxon apparié) après la propagation de la fissure (Table I).

6.3 Discussion

Au cours de cette étude, nous avons réussi à initier et propager une fissure principale au centre des éprouvettes d'os cortical sans qu'il y ait rupture (sauf pour deux échantillons). Les valeurs des paramètres de ténacité sont conformes aux valeurs trouvées dans la littérature pour des tests menés en flexion sur des éprouvettes d'os humain dont l'axe des ostéons est parallèle à l'axe de l'éprouvette (Mode 1 transverse) (Zioupos and Currey, 1998; Wang *et al.*, 2002; Nalla *et al.*, 2003; Peterlik *et al.*, 2005; Koester *et al.*, 2011).

L'évaluation de la longueur de la fissure par imagerie SR- μ CT dans toute l'épaisseur de l'éprouvette évite la sous-estimation ou la sur-estimation de la longueur, comme c'est parfois le cas lorsque l'analyse est réalisée uniquement à partir des faces externes. En effet, pour certaines éprouvettes, aucune fissure n'était visible à la surface de l'échantillon alors qu'une fissuration avait bien eu lieu dans l'échantillon. Cela se reflète dans le coefficient de variation CV de Cr.Le ($CV\% = SD/\mu$, où SD et μ sont respectivement l'écart type et la valeur moyenne de la longueur Cr.Le obtenues à partir des 6 coupes histologiques de chaque échantillon). Ainsi la variabilité de Cr.Le peut dépasser les 100% pour les échantillons ayant la plus faible longueur de fissure (213_2009_6M1 et 215_2009_4P1). Pour les autres échantillons, la variabilité moyenne est de l'ordre de 50%, d'où la nécessité d'une analyse de la fissure dans toute l'épaisseur de l'éprouvette afin d'avoir l'estimation la plus fiable possible.

L'arrêt des tests de ténacité à différents niveaux de propagation nous a permis d'obtenir une large gamme de longueurs et d'orientation de fissure et de tester la sensibilité de la technique NRUS dont sont issus les paramètres non-linéaires élastique α_f et dissipatif α_Q .

Dans cette étude, nous avons vu que l'orientation moyenne de la fissure est $27^\circ \pm 19$. Cette moyenne masque des disparités importantes suivant la taille de la fissure. Ainsi, l'initiation de la fissure commence généralement dans l'axe de l'entaille, perpendiculairement à l'axe des ostéons (Fig.6). Par exemple, la fissure la plus courte (échantillon 215_2009_4P1) mesure en moyenne $6\mu\text{m}$ sur toute l'épaisseur de l'éprouvette d'os et son orientation est presque perpendiculaire à l'axe des ostéons avec un angle de 81° . A l'opposé, les deux

fissures les plus longues (supérieure à 900 μm), sont presque parallèles aux ostéons avec un angle moyen inférieur à 17°. Ce résultat est conforme aux données de la littérature. Ainsi Wasserman (Wasserman *et al.*, 2008) a montré que les fissures présentes *in-vivo* sont préférentiellement parallèles à l'axe des ostéons. De même, si l'initiation de la fissure se fait généralement dans l'axe de l'entaille, la fissure est très vite déviée par les obstacles rencontrés sur son chemin. En particulier, il est difficile pour la fissure de passer à travers les lignes cémentantes qui délimitent les ostéons dans la matrice osseuse. La fissure aura donc tendance à contourner les ostéons puis à se propager le long des ostéons, guidée par les lignes cémentantes (Ritchie *et al.*, 2009).

Les valeurs des paramètres non-linéaires α_f et α_Q initiaux sont comparables à celles trouvées dans l'étude de fatigue (chapitre 5) et similaires aux valeurs trouvées pour l'os cortical bovin (chapitre 4). Par contre les échantillons endommagés ont des valeurs α_f et α_Q bien supérieures à celles mesurées lors des tests de fatigue (chapitre 5). Grâce à l'évaluation conjointe de la longueur de la fissure Cr.Le et des paramètres non-linéaires pour chaque échantillon, nous avons pu mettre en évidence, pour la première fois, une corrélation significative entre Cr.Le et les paramètres α_f et α_Q . Si on se réfère à la littérature, quelques études ont rapporté un lien entre la non-linéarité du matériau et un endommagement localisé, matérialisé par la propagation d'une seule fissure principale. Ainsi Duffour (Duffour *et al.*, 2006) observe la progression d'un paramètre non-linéaire globale (combinant les effets non-linéaires classiques et non classiques) d'un facteur x4 quand l'aire de la fissure double dans des échantillons d'acier. Dans une étude toujours réalisée sur des échantillons d'acier, Courtney (Courtney *et al.*, 2008) trouve une augmentation de la non-linéarité (inférieure à x2) quand la taille de la fissure augmente d'un facteur x5 dans un unique échantillon d'acier. Enfin dans le béton, Zardan (Zardan *et al.*, 2010) trouve une relation linéaire et strictement proportionnelle mais non significative entre la longueur d'une fissure et α_f (les deux paramètres progressent d'un facteur identique). Nos résultats sont globalement cohérents avec ceux rapportés dans la littérature, tout en montrant pour la première fois, une relation linéaire significative entre la longueur de la fissure et la non-linéarité hystérétique (α_f et α_Q) des échantillons d'os cortical humain. Citons enfin Donskoy (Donskoy *et al.*, 2001) qui observe aussi une corrélation entre la longueur de la fissure dans une éprouvette en acier et le paramètre non-linéaire (les deux progressent d'un facteur x5) tant que la fissure ne dépasse pas 50% de l'épaisseur totale de l'échantillon. Par contre, lorsque la longueur (ou profondeur) de la fissure est supérieure à 50% de l'épaisseur de l'éprouvette, une forte augmentation du

comportement non linéaire est observée, suggérant même une variation exponentielle de la non-linéarité avec la longueur de fissure. Nos données sont conformes à ce résultat, tout en demandant à être confirmé sur une série d'échantillons plus vaste.

Après propagation de la fissure, l'augmentation de α_f peut être considérable, jusqu'à un facteur multiplicatif x20 et x60 pour les deux échantillons les plus non linéaires (et les plus fissurés). Cette progression est beaucoup plus importante que celle qui a pu être observée lors des tests en fatigue où la variation maximale était inférieure à x1.5 (voir chapitre 5). Toutefois, rappelons que lors de l'étude en fatigue, l'endommagement est supposé rester à un stade précoce et que la surface totale (ou le volume) des microfissures, où les mécanismes non linéaires sont susceptibles de prendre leur origine, reste probablement bien moins importante dans le cas d'échantillons fatigués que dans le cas d'éprouvettes fissurées par le test de ténacité. Il serait donc souhaitable dans une prochaine étude de compléter les données par la quantification des caractéristiques 3-D du micro-endommagement osseux. Seule une telle quantification serait susceptible d'apporter un éclairage sur le rôle joué par le volume occupé par les fissures sur le comportement non linéaire et de distinguer ainsi les deux types de tests (fatigue et ténacité) vis à vis du comportement non linéaire.

Du point de vue de l'acoustique non-linéaire, l'orientation de la fissure peut modifier le comportement non-linéaire. En effet, l'activation par ouverture/fermeture d'une fissure orientée perpendiculairement à la propagation de l'onde de compression devrait être plus facile que lorsque la fissure est parallèle à l'axe de propagation des ondes de compression (Van den Abeele *et al.*, 2001a; Van den Abeele *et al.*, 2001b). Nos données, montrant une corrélation de α_f avec Cr.Le.Proj sensiblement meilleure qu'avec Cr.Le semblent aller dans ce sens, encore qu'elles soient insuffisantes pour confirmer ou infirmer l'hypothèse.

Notre étude compare la variation de la non-linéarité non classique en condition sèche et hydratée pour un même lot d'échantillons. Nous avons trouvé que les non-linéarités élastique α_f et dissipative α_Q mesurées sur les échantillons hydratés est significativement supérieure à celle mesurée sur les mêmes échantillons secs (Fig.8). Ce résultat selon lequel la non-linéarité de l'os augmente significativement avec son degré d'hydratation. est comparable à ce qui a pu être mesuré dans les roches (Johnson *et al.*, 2004) et prédit par certains modèles (Nazarov, 2001; Van den Abeele *et al.*, 2002) (voir paragraphe 2.3.4 du chapitre 2). Il illustre une fois de plus l'importance d'un contrôle strict des conditions de mesure (température, humidité), tout particulièrement lors de protocoles destinés au suivi de l'évolution des

propriétés non linéaires. Notons qu'il n'est pas possible d'extraire les paramètres α_Q des deux échantillons les plus non-linéaires. En effet, ces deux échantillons ne présentent plus de dépendance linéaire entre l'amplitude de déformation ε et la variation du facteur de perte Q^{-1} . Lorsque le niveau de déformation atteint $\varepsilon = 10^{-4}$, le facteur de perte sature. A notre connaissance, ce comportement n'a jamais été mesuré dans des matériaux endommagés. Seuls les alliages métalliques subissent parfois une modification de la loi de puissance décrivant la dépendance en amplitude de l'atténuation et de la variation du module lorsque le niveau de déformation est très élevé $\varepsilon > 10^{-4}$ (voir paragraphe 2.3.2 du chapitre 2). Cela se traduit par une dépendance en amplitude du rapport de Read ($r = \pi/2 * \alpha_Q / \alpha_f$) qui en est théoriquement indépendant (voir paragraphe 2.2.2 du chapitre 2)

Pour finir, nous n'avons pas présenté les résultats de l'approche multimodale bien que nous ayons mesuré les modes 2 et 3 de compression en plus du mode 1. Les résultats sont similaires à ceux trouvés pour le mode 1 (Fig.11). Nous n'avons pas trouvé de variation significative des paramètres α_f et α_Q en fonction du mode. Ces résultats sont en accord avec la théorie (Liu *et al.*, 2010). En effet, la valeur du paramètre non-linéaire α_f mesuré (i.e. apparent) dépend du champ de déformation local. En mode encastré-libre, le champ de déformation au centre de l'éprouvette (i.e où se situe la fissure) est identique pour les trois modes. La valeur du paramètre non-linéaire mesuré doit donc être la même quel que soit le mode de résonance comme nous l'avons mesuré. Pour avoir un champ de déformation local différent, il aurait fallu avoir des conditions aux limites différentes, par exemple symétriques (encastré-encastré ou libre-libre). Nous avons également exploré le comportement non linéaire en mode de flexion. Les résultats sont très similaires à ceux obtenus en mode de compression. En effet, les contraintes de cisaillement restent marginales en flexion et l'activation de la non-linéarité se fait aussi majoritairement par ouverture/fermeture de la fissure, et moins par friction. Finalement, l'excitation en mode de flexion est très proche, d'un point de vue de la non-linéarité élastique de celle d'un mode longitudinal. Ce sont les mêmes coefficients élastiques longitudinaux qui sont testés. Pour tester la sensibilité des coefficients élastiques de cisaillement, il faudrait exciter le barreau en torsion par exemple.

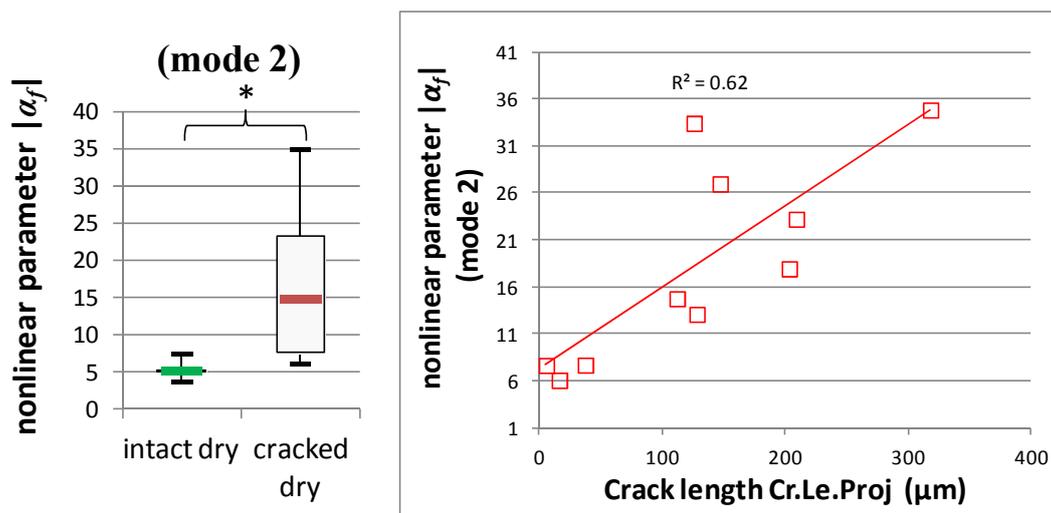


Figure 11 : (a) Paramètre non-linéaire élastique α_f du 2^{ème} mode de résonance avant et après le test de ténacité mesuré en condition sèche. (b) Corrélation entre le paramètre non-linéaire élastique α_f du 2^{ème} mode de résonance et la longueur de la fissure projetée à 90° (Cr.Le.Proj). Les deux outliers ne sont pas représentés.

6.4 Conclusions et perspectives

Nos résultats montrent que

- i) Le test de ténacité a initié et propagé une fissure au centre des éprouvettes d'os cortical humain. Plus la fissure est longue, plus elle se propage le long des ostéons, guidées par les lignes cémentantes.
- ii) Les paramètres non-linéaires α_f et α_Q augmentent significativement après le test de ténacité. Ces paramètres sont aussi significativement plus élevés en condition hydratée que sec.
- iii) Une corrélation significative existe entre la longueur de la fissure initiée et propagée dans l'os cortical humain et les paramètres acoustiques non-linéaires α_f et α_Q . La corrélation sensiblement meilleure entre α_f et Cr.Le.Proj semble indiquer une activation plus efficace des portions de fissures orientées perpendiculairement à l'axe de propagation des ondes acoustiques.

Cette étude montre pour la première fois une corrélation significative entre la longueur d'une fissure principale et un paramètre non-linéaire, en l'occurrence le paramètre non-linéaire élastique non classique α_f . La corrélation est moins bonne pour le paramètre non-linéaire dissipatif α_Q . Ce résultat corrobore les conclusions de l'étude en fatigue réalisée également sur des éprouvettes d'os cortical humain. Les résultats obtenus dans les études suggèrent l'utilisation préférentielle du paramètre non-linéaire élastique non classique α_f sur le

paramètre non-linéaire dissipatif α_Q que ce soit lors de l'augmentation de la taille d'une fissure localisée ou lors de l'augmentation de la densité de fissures non localisées.

Si la sensibilité de la non-linéarité acoustique à l'orientation de la fissure est confirmée, ce paramètre sera à prendre en compte pour le développement d'une méthode dédiée à la mesure *in-vivo*. La technique d'acoustique non-linéaire devra permettre une activation optimale des fissures en propageant des ondes acoustiques de compression ou de cisaillement de polarisation perpendiculaire à l'orientation principale des fissures.

Bibliographie

- Antonaci, P., Bruno, C., Bocca, P., Scalerandi, M., and Gliozzi, A. (2010). "Nonlinear ultrasonic evaluation of load effects on discontinuities in concrete," *Cement and Concrete Research* **40**, 340-346.
- ASTM (2008a). "Standard test method for measurement of fracture toughness," (West Conshohocken).
- ASTM (2008b). "Standard Test Methods for Determination of Fracture Toughness of Advanced Ceramics at Ambient Temperature," (West Conshohocken).
- Bentahar, M., and El Guerjouma, R. (2009). "Monitoring progressive damage in polymer-based composite using nonlinear dynamics and acoustic emission," *The Journal of the Acoustical Society of America* **125**, EL39.
- Cantrell, J., and Yost, W. (2001). "Nonlinear ultrasonic characterization of fatigue microstructures," *International Journal of fatigue* **23**, 487-490.
- Cantrell, J. H. (2006). "Dependence of microelastic-plastic nonlinearity of martensitic stainless steel on fatigue damage accumulation," *Journal of applied physics* **100**, 063508.
- Courtney, C., Drinkwater, B., Neild, S., and Wilcox, P. (2008). "Factors affecting the ultrasonic intermodulation crack detection technique using bispectral analysis," *NDT & E International* **41**, 223-234.
- Currey, J. D. (1988). "The effect of porosity and mineral content on the Young's modulus of elasticity of compact bone," *Journal of Biomechanics* **21**, 131-139.
- Donskoy, D., Sutin, A., and Ekimov, A. (2001). "Nonlinear acoustic interaction on contact interfaces and its use for nondestructive testing," *Ndt & E International* **34**, 231-238.
- Duffour, P., Morbidini, M., and Cawley, P. (2006). "A study of the vibro-acoustic modulation technique for the detection of cracks in metals," *The Journal of the Acoustical Society of America* **119**, 1463.
- Frouin, J., Sathish, S., Matikas, T. E., and Na, J. K. (1999). "Ultrasonic linear and nonlinear behavior of fatigued Ti-6Al-4V," *Journal of materials research* **14**, 1295-1298.
- Granke, M., Grimal, Q., Saïed, A., Nauleau, P., Peyrin, F., and Laugier, P. (2011). "Change in porosity is the major determinant of the variation of cortical bone elasticity at the millimeter scale in aged women," *Bone*.
- Johnson, P. A., Zinszner, B., Rasolofosaon, P., Cohen-Tenoudji, F., and Van Den Abeele, K. (2004). "Dynamic measurements of the nonlinear elastic parameter alpha in rock under varying conditions," *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **109**.
- Koester, K., Barth, H., and Ritchie, R. (2011). "Effect of aging on the transverse toughness of human cortical bone: Evaluation by R-curves," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*.
- Koester, K. J., Ager, J., and Ritchie, R. (2008). "The true toughness of human cortical bone measured with realistically short cracks," *Nature materials* **7**, 672-677.
- Kulin, R. M., Jiang, F., and Vecchio, K. S. (2011). "Effects of age and loading rate on equine cortical bone failure," *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* **4**, 57-75.
- Larrue, A., Rattner, A., Peter, Z. A., Olivier, C., Laroche, N., Vico, L., and Peyrin, F. (2011). "Synchrotron Radiation Micro-CT at the Micrometer Scale for the Analysis of the Three-Dimensional Morphology of Microcracks in Human Trabecular Bone," *PLoS ONE* **6**, e21297.
- Lesnicki, K. J., Kim, J. Y., Kurtis, K., and Jacobs, L. J. (2011). "CHARACTERIZATION OF ALKALI-SILICA REACTION IN CONCRETE SPECIMENS USING A NONLINEAR VIBRATION TECHNIQUE," p. 1267.

- Liu, X., Dao, Z., Zhu, J., Qu, W., Gong, X., Van Den Abeele, K., and Ma, L. (2010). "Localization of material defects using nonlinear resonant ultrasound spectroscopy under asymmetric boundary conditions," *Physics Procedia* **3**, 55-61.
- Moreschi, H., Callé, S., Guerard, S., Mitton, D., Renaud, G., and Defontaine, M. (2011). "Monitoring trabecular bone microdamage using a dynamic acousto-elastic testing method," *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part H: Journal of Engineering in Medicine* **225**, 1-12.
- Nalla, R. K., Kinney, J. H., and Ritchie, R. O. (2003). "Mechanistic fracture criteria for the failure of human cortical bone," *Nature Materials* **2**, 164-168.
- Nazarov, V. (2001). "Acoustic nonlinearity of cracks partially filled with liquid: Cubic approximation," *The Journal of the Acoustical Society of America* **109**, 2642.
- Peterlik, H., Roschger, P., Klaushofer, K., and Fratzl, P. (2005). "From brittle to ductile fracture of bone," *Nature materials* **5**, 52-55.
- Reilly, D. T., and Burstein, A. H. (1975). "The elastic and ultimate properties of compact bone tissue," *Journal of Biomechanics* **8**, 393-396, IN399-IN311, 397-405.
- Rho, J. Y., and Pharr, G. M. (1999). "Effects of drying on the mechanical properties of bovine femur measured by nanoindentation," *Journal of Materials Science: Materials in Medicine* **10**, 485-488.
- Ritchie, R., Koester, K., Ionova, S., Yao, W., Lane, N., and Ager III, J. (2008). "Measurement of the toughness of bone: a tutorial with special reference to small animal studies," *Bone* **43**, 798-812.
- Ritchie, R. O., Buehler, M. J., and Hansma, P. (2009). "Plasticity and toughness in bone," *Phys. Today* **62**, 41-47.
- Straka, L., Yagodzinsky, Y., Landa, M., and Hänninen, H. (2008). "Detection of structural damage of aluminum alloy 6082 using elastic wave modulation spectroscopy," *NDT & E International* **41**, 554-563.
- Van den Abeele, K., Carmeliet, J., Johnson, P., and Zinszner, B. (2002). "Influence of water saturation on the nonlinear elastic mesoscopic response in Earth materials and the implications to the mechanism of nonlinearity," *J. Geophys. Res* **107**, 2121.
- Van den Abeele, K., and De Visscher, J. (2000). "Damage assessment in reinforced concrete using spectral and temporal nonlinear vibration techniques," *Cement and Concrete Research* **30**, 1453-1464.
- Van den Abeele, K., Le Bas, P., Van Damme, B., and Katkowski, T. (2009). "Quantification of material nonlinearity in relation to microdamage density using nonlinear reverberation spectroscopy: Experimental and theoretical study," *The Journal of the Acoustical Society of America* **126**, 963.
- Van den Abeele, K., Sutin, A., Carmeliet, J., and Johnson, P. A. (2001a). "Micro-damage diagnostics using nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS)," *Ndt & E International* **34**, 239-248.
- Van den Abeele, K., Van de Velde, K., and Carmeliet, J. (2001b). "Inferring the degradation of pultruded composites from dynamic nonlinear resonance measurements," *Polymer Composites* **22**, 555-567.
- Wang, X., Shen, X., Li, X., and Mauli Agrawal, C. (2002). "Age-related changes in the collagen network and toughness of bone," *Bone* **31**, 1-7.
- Wasserman, N., Brydges, B., Searles, S., and Akkus, O. (2008). "In vivo linear microcracks of human femoral cortical bone remain parallel to osteons during aging," *Bone* **43**, 856-861.
- Yan, J., Mecholsky, J. J., and Clifton, K. B. (2007). "How tough is bone? Application of elastic-plastic fracture mechanics to bone," *Bone* **40**, 479-484.

- Zagrai, A., Donskoy, D., Chudnovsky, A., and Golovin, E. (2008). "Micro-and Macroscale Damage Detection Using the Nonlinear Acoustic Vibro-Modulation Technique," *Research in Nondestructive Evaluation* **19**, 104-128.
- Zardan, J. P., Payan, C., Garnier, V., and Salin, J. (2010). "Effect of the presence and size of a localized nonlinear source in concrete."
- Zioupos, P., and Currey, J. (1998). "Changes in the stiffness, strength, and toughness of human cortical bone with age," *Bone* **22**, 57-66.

Conclusion

Le travail décrit dans ce manuscrit concerne l'évaluation de la spectroscopie ultrasonore non-linéaire (NRUS) pour la détection et le suivi du micro-endommagement de l'os cortical humain.

Dans un premier temps, nous avons mis au point une procédure originale de correction des données issues de mesures NRUS obtenues sur des petits échantillons. La procédure de correction, relativement simple à mettre en œuvre, s'avère être une alternative efficace au contrôle drastique des conditions environnementales pendant l'expérience (contrôle en température et en humidité). En effet, cette procédure permet d'augmenter significativement la précision et la sensibilité des mesures NRUS. Ainsi, nous avons pu mesurer des décalages en fréquence de l'ordre de 10^{-5} , inférieurs au seuil de 10^{-4} , souvent considéré comme la limite de sensibilité de la technique NRUS dans des conditions expérimentales habituelles. De plus, nous avons pu atteindre une reproductibilité supérieure à celle généralement admise lors des expérimentations non-linéaires (15% pour l'os cortical contre 30% habituellement). Pour la première fois, nous avons pu mettre en évidence que la non-linéarité de l'os cortical humain ou bovin est essentiellement de type non-classique. Nous avons aussi mesuré le niveau de non-linéarité intrinsèque de l'os cortical qui s'avère être un à deux ordres de grandeur inférieur à celui mesuré dans les métaux et les roches. Par contre, la procédure de correction des données ne permet pas de séparer la contribution des mécanismes non-hystérétiques de types visqueux et thermo-élastique de celle des véritables mécanismes hystérétiques, les différents phénomènes entrant en compétition durant les mesures NRUS.

Nous avons pu mesurer, dans un second temps, l'évolution de la non-linéarité de deux groupes d'échantillons d'os cortical prélevés sur des diaphyses fémorales humaines puis taillés sous forme parallélépipédique. Les spécimens du premier groupe ont été endommagés progressivement par flexion 4-points. Après chacune des quatre étapes d'endommagement la non-linéarité des échantillons a été mesurée par NRUS. Un effet significatif de l'accumulation progressive d'endommagement, objectivée par les propriétés mécaniques (E_{LEBT}) est clairement mis en évidence sur le comportement non-linéaire élastique des échantillons. Pour la première fois l'évaluation conjointe du micro-endommagement par microtomographie à

rayonnement synchrotron (SR- μ CT) a été réalisée sur la même série d'échantillons. L'analyse des images SR- μ CT nous a permis d'établir une augmentation de la densité de petites microfissures dans les régions endommagées et que celle-ci est liée au niveau de non linéarité mesurée. Nous pensons que ces petites microfissures, dont la taille est inférieure au 1^{er} quartile ($<40\mu\text{m}$) sont le signe d'un endommagement précoce.

Les spécimens d'os cortical du deuxième groupe ont subi un test de ténacité pour initier et propager de manière contrôlée une fissure unique au centre des éprouvettes. Les mesures NRUS effectuées avant et après propagation de la fissure montrent une augmentation significative des paramètres non-linéaires. Enfin nous avons mis en évidence une corrélation significative entre l'élasticité non-linéaire des échantillons d'os cortical et la longueur de la fissure. Une meilleure corrélation entre non-linéarité et longueur projetée de la fissure pourrait suggérer une meilleure activation de la fissure lorsqu'elle est orientée perpendiculairement à l'axe de propagation des ondes acoustiques.

Nos expériences montrent que les résultats sont indépendants du mode de compression excité, prouvant la robustesse de la technique NRUS. Les résultats des différentes études suggèrent aussi l'utilisation préférentielle du paramètre non-linéaire élastique non classique à celle du paramètre non-linéaire dissipatif pour détecter le micro-endommagement ou suivre son accumulation. Enfin, nous avons montré que l'élasticité non-linéaire de l'os cortical augmente avec son degré d'hydratation, résultat qui rappelle la nécessité de contrôler strictement les conditions expérimentales.

La technique NRUS optimisée est sensible à l'endommagement progressif de l'os cortical. Le paramètre non-linéaire élastique issu des mesures NRUS pourrait servir d'indicateur de la présence d'une fissure critique ou d'un micro-endommagement précoce de l'os. Il reste cependant de nombreux verrous scientifiques et techniques à résoudre : (1) Comprendre l'origine de la non-linéarité non classique de l'os cortical ; (2) Déterminer la meilleure façon d'exciter les sources de non-linéarité présentes dans l'os cortical ; (3) Mettre au point une technique d'acoustique non-linéaire utilisable *in-vivo* et la valider. La caractérisation non-invasive du micro-endommagement osseux *in-vivo* ouvrirait ainsi de nouvelles perspectives dans le diagnostic ou le suivi thérapeutique de pathologies osseuses caractérisées par la présence ou l'accumulation d'endommagement.

ANNEXE 1. (CHAPITRE 4)

QUEL MODELE POUR LES MATERIAUX POLYCRISTALLINS ?

Dans cette annexe nous revenons sur les trois types de matériaux polycristallins (acier inox austénitique 304, alliage d'aluminium 2027 et laiton) pour lesquels l'élasticité non linéaire hystérétique est mal connue, voire parfois contestée. Ces matériaux ne font pas partie, à priori, de la classe de matériaux non-linéaires de type NME (roches) ou de type KNE (métaux hexagonaux à face centrée) (voir Chapitre 2). Ils devraient normalement faire partie de la classe des matériaux polycristallins dont le comportement non-linéaire est principalement lié aux frictions internes, en particulier aux mouvements des dislocations.

Nous rapportons ici quelques résultats complémentaires à ceux qui sont exposés dans le corps du manuscrit au chapitre 4, à savoir :

1. la loi de puissance m décrivant la dépendance en amplitude des frictions internes (ADIF) et du module élastique (ADMD) ;
2. la dépendance en amplitude du rapport de Read r ;
3. la dépendance des non-linéarités élastique et dissipative à la fréquence de sollicitation.

Ceci devrait permettre de mettre en perspectives les résultats pour ces trois métaux polycristallins avec les principaux modèles décrivant la non-linéarité élastique non classique.

Rappelons que pour chaque matériau, trois échantillons ont été mesurés. Par la suite, la moyenne des résultats obtenus sur trois échantillons sont présentés. Tous les échantillons sont des barreaux de forme parallélépipédique (50 x 4 x 2mm). Un tube additionnel en acier inox 304 de longueur 200mm et diamètre 30mm a aussi été mesuré pour tester la dépendance des résultats à la géométrie, la fréquence et au prétraitement (recuit, laminage...).

Nous avons mesuré la dépendance en amplitude des frictions internes (ADIF) et du module élastique (ADMD) des matériaux en utilisant la version optimisée de la technique de

spectroscopie ultrasonore non-linéaire ultrasonore (NRUS) décrite au chapitre 4. La gamme de fréquences utilisées varie entre 6kHz (pour le premier mode de compression du tube d'acier) à 125kHz (pour le troisième mode de compression du barreau de l'aluminium).

La fréquence du pic de résonance f et le facteur de qualité Q ($Q = f/df$, avec df la largeur du pic à -3dB) sont extraits des courbes de résonance obtenues pour des niveaux de déformation croissants. Ils sont ensuite convertis en variation relative de module K ($\Delta K/K_0 = 2*\Delta f/f_0$) et en variation du décrément logarithmique δ ($\Delta\delta = \pi*(Q^{-1} - Q_0^{-1})$) afin d'avoir les mêmes notations que dans la littérature dédiée à l'étude de l'ADIF et de l'ADMD des métaux (Read, Nowick, Kustov, Lebedev...voir le chapitre 2 pour plus de détails). L'indice « 0 » correspond à la valeur de référence obtenue pour un régime linéaire. Pendant toute la durée de l'expérience, la température de la salle est contrôlée ($25^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$).

Sur la Fig.A1.1 sont présentées la dépendance en amplitude moyenne des frictions internes et la dépendance en amplitude moyenne de la variation du module élastique du deuxième mode de l'acier inox (barreau et tube), de l'aluminium et du laiton. Notons que la représentation diffère de la Fig.8 du chapitre 4 car cette fois, nous avons représenté les résultats tels que le fait la communauté scientifique travaillant dans le domaine des matériaux polycristallins (Read, Nowick, Kustov, Lebedev...voir le chapitre 2 pour plus de détails). Nous trouvons que l'ADIF et l'ADMD des trois métaux dépendent en moyenne de l'amplitude suivant une loi de puissance d'exposant $m=1$ ($r^2 > 0.99$).

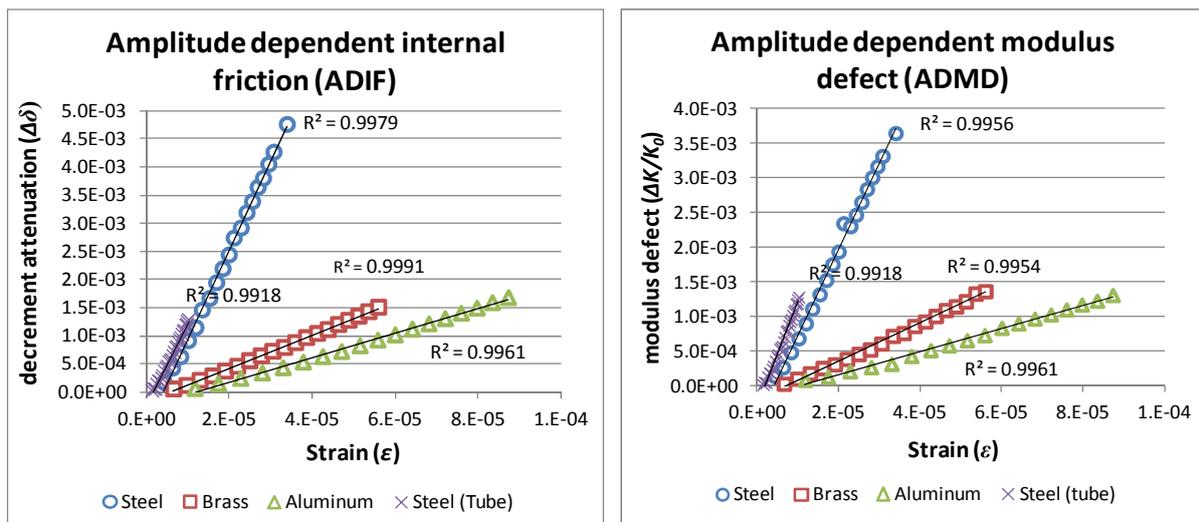


Figure A1.1: (a) Dépendance en amplitude moyenne des frictions internes (ADIF) et (b) dépendance en amplitude moyenne de la variation du module élastique pour tous les matériaux testés (2^{ème} mode de compression).

Le rapport de Read ($r = \Delta\delta/(\Delta K/K_0) = \pi/2(\alpha_Q/\alpha_f)$) pour les quatre types d'échantillons en fonction de la déformation est présenté Fig.A1.2. La valeur de r , proche de $4/3$, est comprise entre 1.1 et 1.4 quelque soit le matériau ou le niveau de déformation Et ne manifeste aucune dépendance en amplitude, même lorsque la déformation atteint 10^{-4} pour les échantillons d'aluminium.

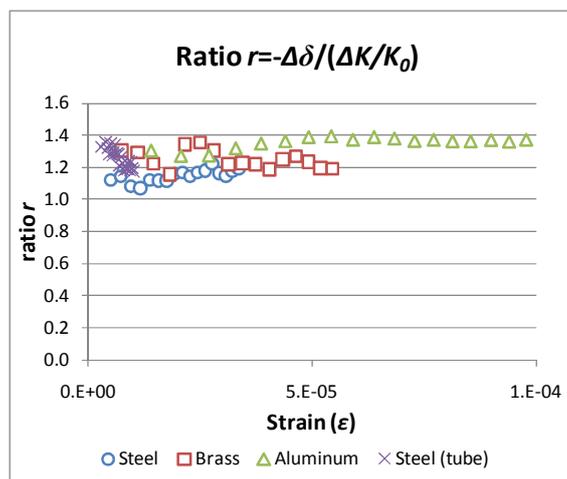


Figure A1.2: Variation du rapport de Read r en fonction de l'amplitude de déformation pour les 4 types d'échantillons

Comme nous avons quatre fréquences de résonance pour l'acier (mode 1 et 2 du tube et mode 2 et 3 du barreau) et trois fréquences de résonance pour l'aluminium (mode 1, 2 et 3) balayant une large bande fréquentielle (de 6kHz à 125kHz), nous avons tracé les paramètres α_f et α_Q en fonction de la fréquence d'excitation (Fig.A1.3). On observe une décroissance monotone des paramètres α_f et α_Q pour l'acier inox et le comportement inverse pour l'aluminium.

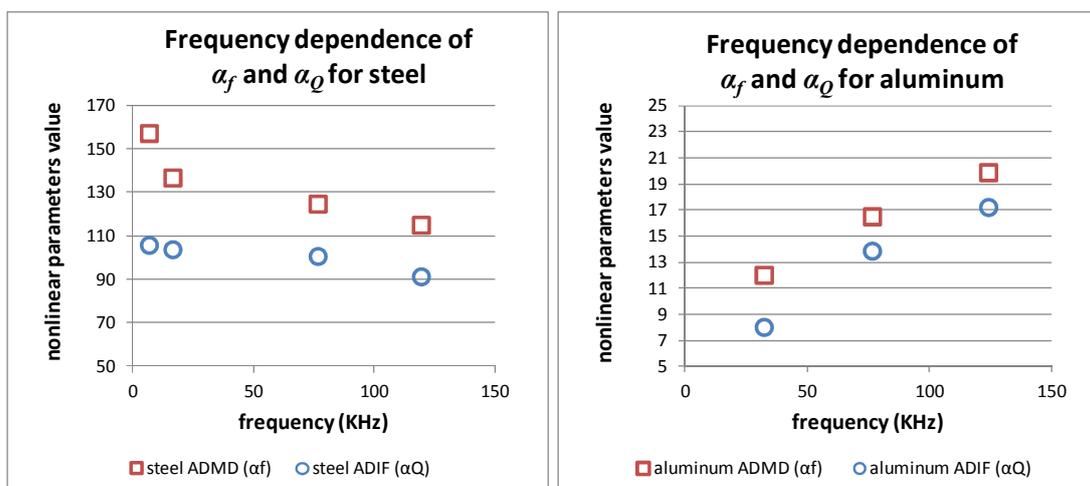


Figure A1.3: Dépendance en fréquence des frictions internes (i.e dissipation) et de la réduction du module élastique (i.e décalage en fréquence), (a) pour l'acier inox ; (b) pour l'aluminium

Dans cette étude, nous avons montré que nos échantillons métalliques d'acier inox, d'aluminium et de laiton présentent tous une dépendance linéaire ($m = 1$) pour l'ADIF et l'ADMD quand l'amplitude de déformation est supérieure à 10^{-6} . Aucune inflexion des courbes permettant de présager de la présence de seuils (bas $<10^{-6}$ ou haut $>10^{-4}$) n'est visible. Nous pouvons donc faire l'hypothèse que nous sommes bien en présence d'un comportement purement hystérétique élastique. Ce phénomène peut donc être décrit par l'un des trois principaux modèles (Davidenkov, Granato-Lücke et *PM-Space*). Comme la dépendance est linéaire, l'élasticité hystérétique est de type quadratique, c'est-à-dire que les branches de la boucle d'hystérésis de la relation contrainte-déformation suivent une loi quadratique.

Le rapport de Read étant très proche de $4/3$ (Fig. A1.2) pour les trois types de métaux polycristallins, il est conforme aux prédictions des modèles anélastiques avec hystérésis quadratique (*PM-Space* et Davidenkov) mais pas du modèle de Granato-Lücke (pour lequel $r = 1/3$). Le modèle de Granato-Lücke développé à l'origine spécifiquement pour les cristaux purs et monocristallins, ne semble pas pouvoir décrire le comportement non-linéaire non classique des matériaux polycristallins contenant des impuretés.

D'autre part, le rapport de Read ne varie pas avec la déformation même lorsqu'elle atteint 10^{-4} pour l'aluminium (Fig.A1.2). Aucun phénomène de seuil n'est mis en évidence pour des déformations comprises entre $10^{-6} < \epsilon < 10^{-4}$ pour l'acier inox, le laiton et l'aluminium. Or si l'on se réfère au modèle de Kustov et Gremaud dédié aux matériaux polycristallins (Gremaud and Kustov, 1999) (voir chapitre 2 paragraphe 2.3.2), celui-ci prévoit que tant que le seuil de déformation compris entre 10^{-5} et 10^{-4} n'est pas dépassé, le déplacement des dislocations resterait contrôlé uniquement par des forces diffuses athermales et serait bloqué par des obstacles localisés. Lorsque le seuil de déformation est franchi, les dislocations thermiquement activées pourraient surmonter les obstacles localisés et le rapport de Read commencerait à varier.

Enfin, nous avons mesuré une augmentation des paramètres non-linéaires élastiques et dissipatifs pour l'aluminium et une diminution dans le cas de l'acier, sur une large gamme de fréquences [6kHz-125kHz]. Ceci n'est pas prévu par les modèles d'élasticité non-linéaire hystérétique comme Davidenkov et *PM-Space*. Des phénomènes de relaxation et de conditionnement pourraient rendre compte de ces observations. Or notre protocole expérimental combiné à une optimisation de la technique NRUS permet de s'affranchir du conditionnement. Seule la relaxation pourrait donc jouer un rôle. Au cours du chapitre 2, nous

avons décrit deux modèles faisant intervenir un processus de relaxation. Le premier prône une élasticité hystérétique dont la transition est contrôlée par un processus de relaxation thermique (modèle Preisach-Arrhénius (Gusev and Tournat, 2005)). Cependant l'intervention d'un processus thermique serait en contradiction avec le modèle de Kustov et Gremaud, à savoir que le mouvement des dislocations serait athermique pour de faibles déformations ($\epsilon < 10^{-4}$). De plus le modèle Preisach-Arrhénius prédit une dépendance en fréquence uniquement pour des fréquences d'excitation inférieures au hertz (condition quasi-statique) ou supérieures au mégahertz (condition quasi-gelé). La borne haute de la fréquence est liée à la fréquence caractéristique des mouvements atomiques qui est de l'ordre de 10^8 - 10^{12} Hz pour tous les matériaux. Le modèle Preisach-Arrhénius ne semble donc pas adéquat dans le cas présent. Le second modèle fait appel à des mécanismes non-hystérétiques comme la thermo-élasticité ou les pertes visqueuses (Zaitsev and Sas, 2000). D'après ce modèle, les pertes visqueuses pourraient produire une dépendance en amplitude de l'élasticité et de l'atténuation qui viendrait s'ajouter au phénomène purement hystérétique. Comme les pertes visqueuses sont liées à la relaxation des différentes structures du matériau, il existe autant de fréquences caractéristiques que de types de structures (joint de grains, grains, dislocations, microfissure, porosité...). Par conséquent, la contribution du mécanisme non-hystérétique à la non-linéarité apparente serait d'autant plus grande que la fréquence d'excitation serait proche d'une fréquence caractéristique d'une structure. Comme l'acier inox et l'aluminium ont des structures différentes (\neq tailles des grains, \neq densité de dislocations...), les fréquences caractéristiques peuvent être différentes. Ceci pourrait expliquer la variation inversée de la non-linéarité apparente de l'acier inox et de l'aluminium. Pour confirmer cette hypothèse, l'identification préalable des pics d'atténuation des matériaux est nécessaire.

En conclusion, les matériaux polycristallins comme l'acier inox, l'aluminium et le laiton possèdent des propriétés élastiques hystérétiques quadratiques non négligeables, en plus de l'élasticité non-linéaire classique. Leurs comportements non-linéaires hystérétiques (ADIF, ADMD et rapport de Read) semblent pouvoir être décrits par les modèles anélastiques avec hystérésis quadratique tels que Davidenkov ou le *PM-Space*. Par contre, la variation en fonction de la fréquence des paramètres non linéaires élastiques α_f et dissipatif α_Q de l'acier inox et de l'aluminium n'est pas prédite par ces modèles. Une piste de recherche pourrait venir de la modification de la non-linéarité intrinsèque par la relaxation linéaire des structures internes des matériaux (joints de grain, dislocations, grains, microfissures...).

Bibliographie

- Gremaud, G., and Kustov, S. (1999). "Theory of dislocation-solute atom interactions in solid solutions and related nonlinear anelasticity," *Physical Review B* **60**, 9353.
- Gusev, V., and Tournat, V. (2005). "Amplitude- and frequency-dependent nonlinearities in the presence of thermally-induced transitions in the Preisach model of acoustic hysteresis," *Physical Review B* **72**.
- Zaitsev, V. Y., and Sas, P. (2000). "Dissipation in microinhomogeneous solids: inherent amplitude-dependent attenuation of a non-hysteretical and non-frictional type," *Acustica-Acta Acustica* **86**, 429-445.

ANNEXE 2. (CHAPITRE 5)

COMPARAISON ENTRE LE MODULE ULTRASONORE E_{US} ET LE MODULE MECANIQUE E_{MECA}

Le module élastique des échantillons d'os humain a été évalué par deux approches différentes : en quasi-statique (flexion 4 points) et en dynamique (résonance ultrasonore). Le module d'Young mécanique (E_{meca}) a été mesuré en condition humide, immergé dans une solution saline à 37°C à partir du pré-cyclage (20 cycles) en flexion 4 points (ce module était nommé E_{pre} dans le chapitre 5). Le module d'Young E_{meca} est estimé à partir du déplacement de la flèche si la longueur est au moins 20 fois supérieure à l'épaisseur, en faisant l'hypothèse d'un milieu homogène (ASTM, 2008) :

$$E_{meca} = F * S \quad (A2.1)$$

- S est la raideur calculée à partir de la pente force/déplacement.
- F est un facteur qui dépend des dimensions de l'échantillon :

$$F = \frac{1}{48I} * 4L^3 \quad (A2.2)$$

- L est la longueur entre les appuis extérieurs, soit 20mm. On peut faire l'hypothèse que l'erreur est nulle
- I est le moment d'inertie

$$I = \frac{w * h^3}{12} \quad (A2.3)$$

- w est la largeur de l'échantillon (environ 4mm)
- h est l'épaisseur de l'échantillon (environ 2mm)

Le module acoustique est mesuré en condition deshydratée (RH<15%) ou humide (RH>90%) à 37°C, à partir de la fréquence de résonance des 3 premiers modes de barreau des baguettes d'os cortical excités en condition encastré-libre. Nous faisons l'hypothèse que nous

sommes en condition de mode de résonance de barreau car la section est très petite devant la longueur. Ainsi, nous pouvons extraire le module d'Young (E_{us}) à partir de la moyenne des trois modules calculés pour chacun des modes :

$$E_{us} = \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 \left(f_i * \frac{4L}{2i-1} \right)^2 * \rho \quad (A2.4)$$

- f_i , la fréquence de résonance du mode i
- ρ , la densité apparente de l'échantillon déshydraté ou humide

Les valeurs initiales (c'est-à-dire avant endommagement) des modules d'Young obtenues à partir des deux techniques sont représentées dans la Fig.A2.1. On remarque que la valeur moyenne du module ultrasonore (déshydraté : $E_{us} = 21.5 \pm 3.0$ GPa ; humide : $E_{us} = 20.1 \pm 2.6$ GPa) est significativement ($p < 0.001$, Wilcoxon Signed Sum test) supérieure au module mécanique ($E_{mecca.} = 15.1 \pm 3.0$ GPa). Ces valeurs sont comparables à celles que l'on trouve dans la littérature pour chacune des modalités (par exemple pour des échantillons d'os cortical fémoral humain, le module mécanique est égale à 17.3 GPa (Grimal *et al.*, 2009) et le module ultrasonore est égale à 22.1 GPa (Grimal *et al.*, 2009), voir (Grimal *et al.*, 2009) pour plus de valeurs).

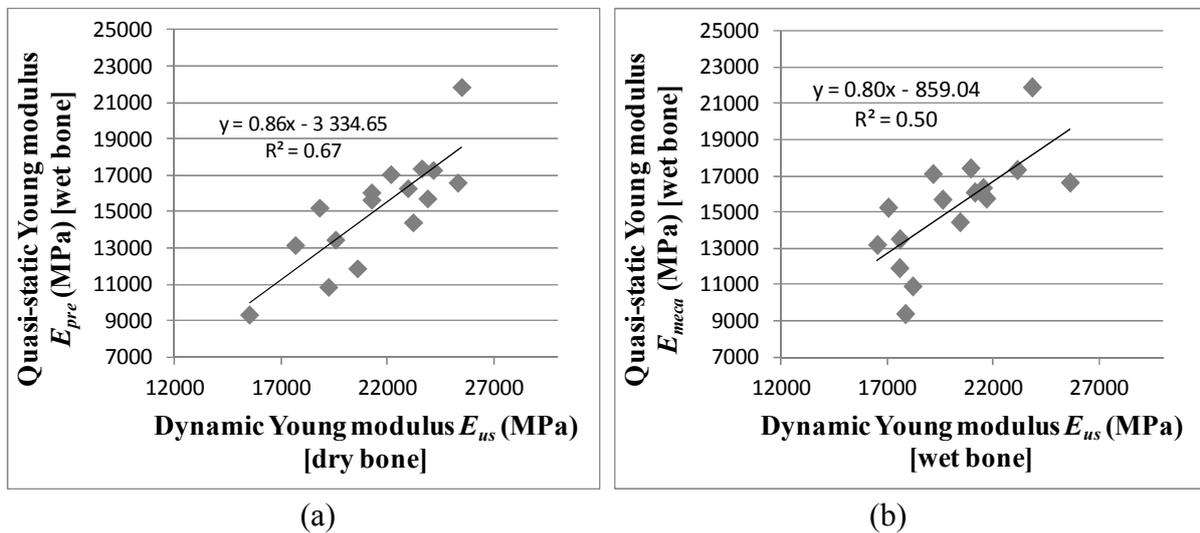


Figure A2.1: Corrélation entre le module quasi-statique mécanique E_{mecca} et le module dynamique ultrasonore E_{US} mesuré en condition déshydratée (a) et hydratée (b)

Bien que les deux modules aient été mesurés à des taux de déformation différents ($\dot{\epsilon} = 5000 \mu\epsilon / 2\text{Hz} = 10^{-2} \text{s}^{-1}$ en quasi-statique et $\dot{\epsilon} > 10^{-4} / 10\text{kHz} = 1 \text{s}^{-1}$ en dynamique), ils sont significativement corrélés (déshydraté : $r = 0.82$; humide : $r = 0.71$ avec dans les deux cas $p < 0.001$, test de Pearson). Le niveau de corrélation est comparable, voir un peu plus élevé que

celui trouvé par les deux autres études faisant état d'une comparaison similaire (E_{meca} vs E_{us}): Grimal (Grimal *et al.*, 2009) ($r=0.63$) et Ashman (Ashman *et al.*, 1984) ($r=0.53$). La dispersion des données autour de la droite de régression peut s'expliquer en grande partie par l'erreur de mesure sur les deux modules, ainsi que l'a démontrée Grimal (Grimal *et al.*, 2009).

Pour avoir une estimation du biais et de sa variation en fonction de la valeur du module mesurée, la représentation de Bland et Altman (Martin Bland and Altman, 1986) est adaptée (Fig.A2.2). En abscisse sont représentées les valeurs moyennes des deux types de modules ($(E_{us}+E_{meca})/2$) tandis qu'en ordonnée sont représentées les différences entre les deux types de modules ($E_{us}-E_{meca}$), dans le cas d'une mesure en condition déshydratée (Fig.A2.2a) ou humide (Fig.A2.2b). Les différences varient entre 3300MPa et 8800MPa en condition déshydratée et entre 2000MPa et 9000MPa en condition humide et restent toutes dans l'intervalle de confiance (matérialisé par les bornes $\pm 1.96*SD$, SD = écart type des différences). De plus, comme la répartition des différences ($E_{us}-E_{meca}$) est aléatoire autour de la valeur moyenne du module (entre 18.3GPa et 17.6GPa en condition déshydratée et humide respectivement), nous pouvons conclure que le biais des mesures est indépendant de la valeur du module.

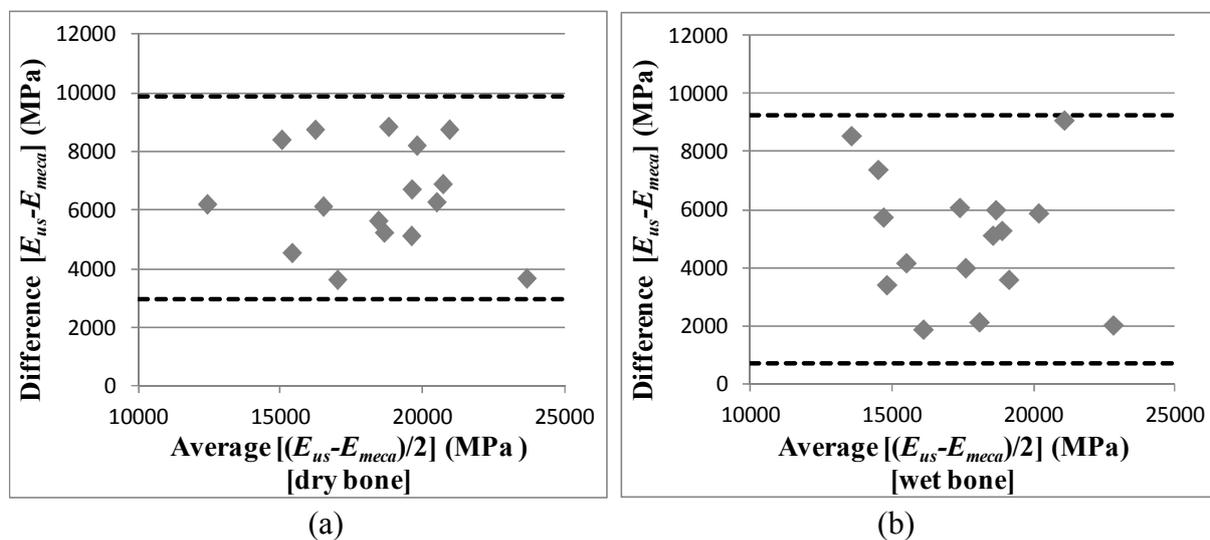


Figure A2.1: Représentation de Bland et Altman permettant d'observer 1) que les différences entre le module mécanique E_{meca} et le module ultrasonore E_{US} (mesuré en condition déshydratée (a) et hydraté (b)) restent dans l'intervalle de confiance (matérialisé par les bornes $\pm 1.96*SD$, SD = écart type des différences), 2) que la répartition des différences est indépendante de la valeur moyenne du module.

Il semble donc que les deux manières d'évaluer le module d'Young mesurent le même paramètre avec un biais (E_{us} est en moyenne supérieure de 3000MPa à E_{meca}). Le biais pourrait s'expliquer par la vitesse de sollicitation qui diffère suivant les deux méthodes. En

effet, l'os cortical étant un matériau viscoélastique, son élasticité dépend de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ à laquelle il est sollicité. Ainsi, plus l'os est sollicité rapidement, moins l'os a le temps de suivre la sollicitation (temps caractéristique) et plus il devient rigide. Ceci fut mis en évidence lors de tests mécanique réalisés par plusieurs auteurs pour des taux de déformation compris entre 10^{-4}s^{-1} et de 10^3s^{-1} (Fig.A2.3).

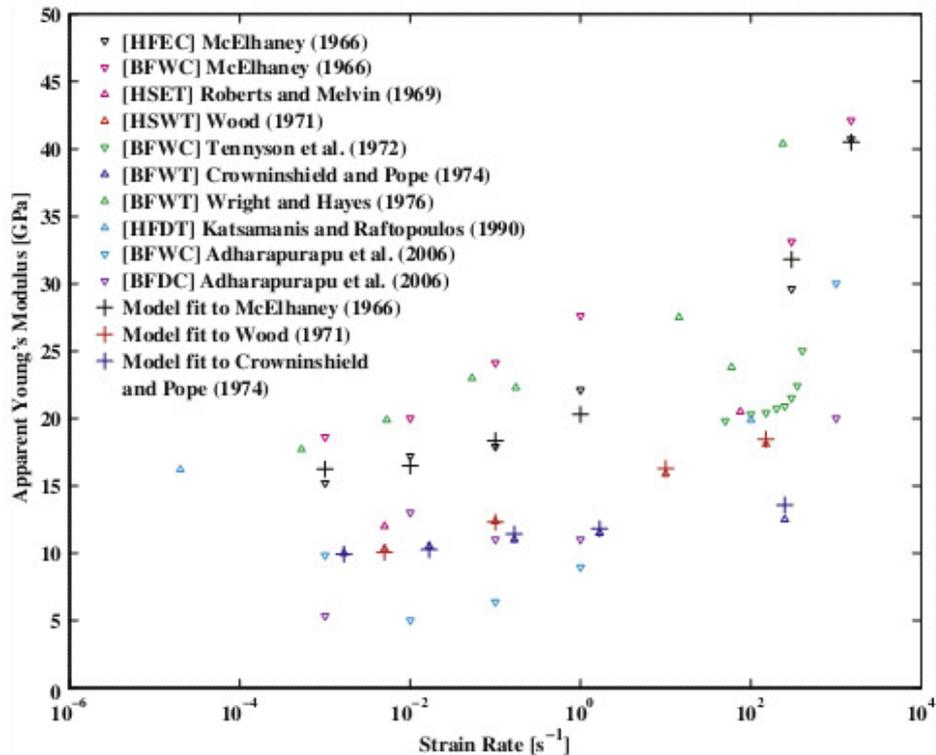


Figure A2.3 : Modules d'Young apparents d'échantillons d'os cortical hydratés (W) ou déshydratés (D) humain (H) ou bovin (B) mesuré mécaniquement (tension (T) ou compression (C)) pour différent taux de déformation $\dot{\epsilon}$. Extrait de (Johnson et al., 2010)

La viscoélasticité responsable de la variation du module pour de faible taux de déformation ($\dot{\epsilon} \ll 1\text{s}^{-1}$) est généralement attribuée au mouvement des molécules constituant les fibres de collagènes minéralisées (Sasaki *et al.*, 1993). Lorsque que $\dot{\epsilon} \gg 1\text{s}^{-1}$ (pour des niveaux de déformation de l'ordre de 10^{-4} , cela revient à des fréquences de sollicitation de l'ordre du kHz), la relaxation de la pression des fluides (dans les nanopores, les canalicules et les canaux de Havers) serait le principal mécanisme responsable du comportement viscoélastique (Garner *et al.*, 2000; Buechner *et al.*, 2001; Gururaja *et al.*, 2005). Ainsi chacune des structures composantes l'os cortical humain auraient un temps caractéristique différent contribuant à la viscoélasticité générale de l'os cortical. Actuellement aucun consensus n'existe sur la valeur, le nombre et l'existence même de ces temps caractéristiques (Garner *et al.*, 2000).

Bibliographie

- Ashman, R., Cowin, S., Van Buskirk, W., and Rice, J. (1984). "A continuous wave technique for the measurement of the elastic properties of cortical bone," *Journal of Biomechanics* **17**, 349-361.
- ASTM (2008). "Standard Test Method for Flexural Properties of Unreinforced and Reinforced Plastics and Electrical Insulating Materials by Four-Point Bending," p. D6272.
- Buechner, P., Lakes, R., Swan, C., and Brand, R. (2001). "A broadband viscoelastic spectroscopic study of bovine bone: implications for fluid flow," *Annals of Biomedical Engineering* **29**, 719-728.
- Garner, E., Lakes, R., Lee, T., Swan, C., and Brand, R. (2000). "Viscoelastic dissipation in compact bone: implications for stress-induced fluid flow in bone," *Journal of biomechanical engineering* **122**, 166.
- Grimal, Q., Hauptert, S., Mitton, D., Vastel, L., and Laugier, P. (2009). "Assessment of cortical bone elasticity and strength: Mechanical testing and ultrasound provide complementary data," *Medical engineering & physics* **31**, 1140-1147.
- Gururaja, S., Kim, H., Swan, C., Brand, R., and Lakes, R. (2005). "Modeling Deformation-Induced Fluid Flow in Cortical Bone's Canalicular-Lacunar System," *Annals of biomedical engineering* **33**, 7-25.
- Johnson, T., Socrate, S., and Boyce, M. (2010). "A viscoelastic, viscoplastic model of cortical bone valid at low and high strain rates," *Acta Biomaterialia* **6**, 4073-4080.
- Martin Bland, J., and Altman, D. G. (1986). "Statistical methods for assessing agreement between two methods of clinical measurement," *The lancet* **327**, 307-310.
- Sasaki, N., Nakayama, Y., Yoshikawa, M., and Enyo, A. (1993). "Stress relaxation function of bone and bone collagen," *Journal of biomechanics* **26**, 1369-1376.

ANNEXE 3. (CHAPITRE 5)

INFLUENCE DE LA VISCOSITE SUR LES TESTS DE FATIGUE

Dans l'étude sur l'accumulation de micro-endommagement décrite dans le chapitre 5, nous avons mesuré en plus du module E_{LEBT} , la déformation résiduelle ε_p (aussi appelée fluage ou en anglais « *creep* ») et le module sécant E_{sec} , tels que les a définis Landrigan (Landrigan and Roeder, 2009). Les trois paramètres sont normalisés par rapport à leur valeur initiale obtenue lors du précyclage. Comme le test de fatigue en flexion 4 points est piloté en charge (-10N ; - F_{max}), les seuls paramètres qui évoluent sont ceux liés au déplacement et donc à la déformation. Nous pouvons donc exprimer les normes de chacun des trois paramètres par un rapport de déformation. Sur la Fig.A3.1 sont représentés les différents types de déformation: (1) La déformation élastique (initiale $\varepsilon_{e,0}$ et finale $\varepsilon_{e,n}$) qui correspond au déplacement maximum sous la charge maximale $-F_{max}$; (2) la déformation résiduelle (initiale $\varepsilon_{p,0}$ et finale $\varepsilon_{p,n}$) qui correspond au déplacement non nul à la charge minimale -10N. La norme du module LEBT, du module sécant et de la déformation résiduelle s'exprime ainsi (Landrigan and Roeder, 2009):

$$norm(E_{LEBT}) = \frac{\varepsilon_{e,0} + \varepsilon_{p,0}}{\varepsilon_{e,n} + \varepsilon_{p,n}} \quad (A3.1) \quad norm(E_{sec}) = \frac{\varepsilon_{e,0}}{\varepsilon_{e,n}} \quad (A3.2) \quad norm(\varepsilon_p) = \frac{\varepsilon_{p,0}}{\varepsilon_{p,n}} \quad (A3.3)$$

Les trois paramètres biomécaniques normalisés après chaque étape d'endommagement sont représentés sur la Fig.A3.2. Nous pouvons remarquer que nos résultats sont en accord avec ceux de Landrigan (Landrigan and Roeder, 2009). Le module LEBT E_{LEBT} normalisé ainsi que le rapport de déformation résiduelle ε_p diminuent au cours de la fatigue tandis que le module sécant E_{sec} normalisé a tendance à augmenter légèrement au cours des trois premières étapes d'endommagement pour se stabiliser après l'étape 4. Notons que le module E_{LEBT} est combiné les effets élastiques (déformation réversible) et anélastique (la déformation résiduelle). D'après l'Eq. A3.2, nous pouvons remarquer que la variation de la déformation élastique est représentée par la norme de E_{sec} , tandis que d'après l'Eq. A3.3, la variation de la

déformation résiduelle est représentée par l'inverse de la norme de ε_p . Par conséquent, pour comprendre la contribution des effets élastique et anélastique sur la variation de E_{LEBT} , il est nécessaire d'étudier séparément la variation de E_{sec} et ε_p .

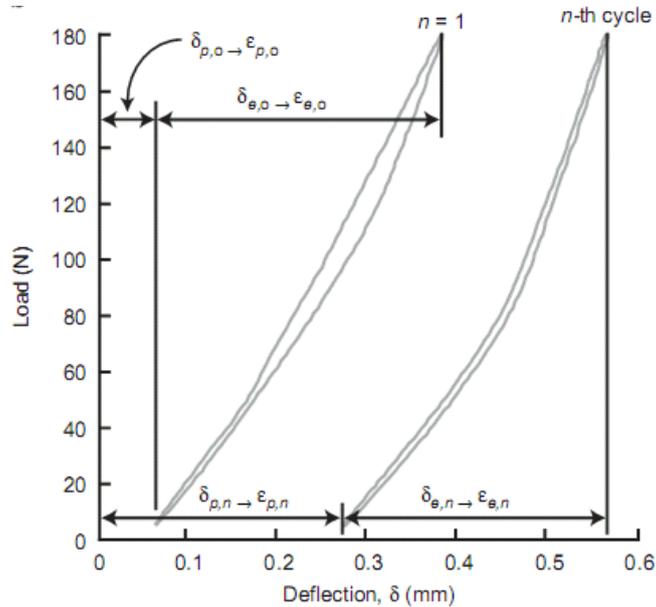


Figure A3.1 : Représentation de la variation des déplacements (δ) (déformation ε) élastiques (indice e) et résiduels (indice p) entre le premier cycle (valeur initiale, indice 0) et le nième cycle (valeur finale, indice n). Extrait de (Landrigan and Roeder, 2009).

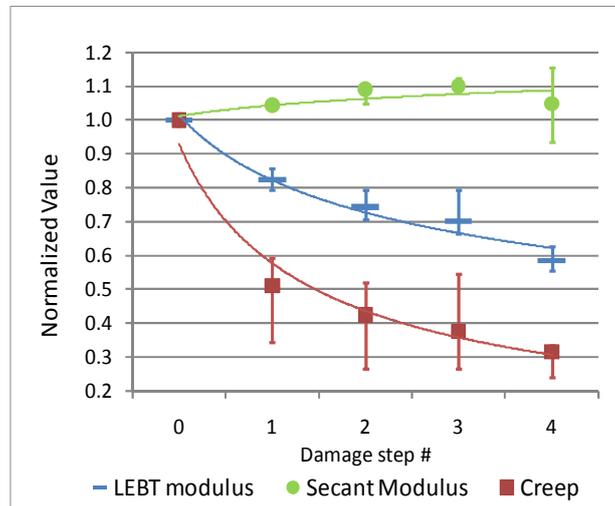


Figure A3.2 : Evolution de la valeur médiane des paramètres biomécaniques normalisés (E_{LEBT} , E_{sec} et la déformation résiduelle ε_p) après chaque étape d'endommagement. La barre d'erreur correspond au 1^{er} et 3rd quartile.

Le comportement du module E_{sec} normalisé semble paradoxal car l'endommagement progressif devrait normalement conduire à la réduction du module sécant (e.g fatigue en

compression et tension (Pattin *et al.*, 1996)). Cependant, il existe quelques études basées sur un protocole de fatigue en flexion similaire à notre étude, pour lesquelles E_{sec} commence à croître au début du processus de fatigue avant de décroître légèrement après quelques dizaines de milliers de cycles (Griffin *et al.*, 1999; Fleck and Eifler, 2007; Landrigan and Roeder, 2009). Ce comportement pourrait s'expliquer par deux phénomènes : (1) le matage¹ (2) la viscoélasticité (Fleck and Eifler, 2007; Zioupos *et al.*, 2008). Le matage de l'os, en particulier au niveau des points d'appuis, peut contribuer à une augmentation locale de la rigidité du tissu osseux. D'autre part, l'os est un matériau viscoélastique qui se rigidifie lorsque la sollicitation mécanique est plus rapide (voir annexe A3). L'accumulation de l'endommagement entraîne une réduction du module élastique, ce qui se traduit, à fréquence de cyclage constante et bornes de chargement fixées, par une augmentation de la déformation et de la vitesse de déformation. Dans les deux cas, le raidissement apparent des échantillons d'os peuvent masquer la réduction effective du module sécant associée à l'accumulation d'endommagement, comme prévu par les modèles micro-mécaniques (Lemaitre and Dufailly, 1987; Feng and Yu, 2010). Cette hypothèse est confirmée par la diminution du module ultrasonore (E_{us}) mesuré 24h après la fin de chaque étape d'endommagement (voir chapitre 5.5.1 et 5.5.2). Par conséquent, l'évolution du module sécant E_{sec} au cours d'un test de fatigue pourrait résulter de la compétition de deux phénomènes qui s'opposent : la dégradation du module associée à l'endommagement et l'augmentation apparente du module associée au matage et plus certainement à la viscoélasticité de l'os. Le paramètre biomécanique E_{sec} n'est peut-être pas un indicateur optimum du micro-endommagement osseux, en particulier lors du démarrage du processus de fatigue, quand la dégradation de l'intégrité de l'os est très faible.

La déformation résiduelle normalisée ε_p diminue rapidement après l'étape 1 (la déformation résiduelle augmente) puis continue à diminuer lentement. Une partie de la déformation résiduelle est due à l'indentation des rouleaux du dispositif de flexion 4 points qui a lieu au début du processus de fatigue, lors du matage des échantillons d'os (compte pour 8% à 48% de ε_p (Landrigan and Roeder, 2009)). Cette déformation est irréversible. Une autre partie de la déformation résiduelle est réversible. En effet, la courbure des échantillons qui est nettement visible à la fin de chaque étape d'endommagement, a pratiquement disparu lors de la mesure NRUS, c'est-à-dire quelques heures plus tard (en général 24h) (voir FigA3.3). La

¹ On désigne par matage une déformation plastique localisée de la matière sous l'effet d'une pression élevée ou d'un choc. Dans le cas présent le matage est lié à la contrainte exercée localement par les quatre rouleaux du dispositif de flexion 4 points.

déformation résiduelle accumulée lors de la fatigue est donc presque entièrement réversible. Par conséquent, le paramètre biomécanique ε_p ne mesure pas de la déformation permanente (i.e. plastique) mais un phénomène de relaxation lié à la viscoélasticité de l'os.

Ces observations sont en accord avec Joo (Joo *et al.*, 2007) qui a montré que la relaxation complète de l'os cortical peut prendre entre plusieurs secondes et plusieurs dizaines de minutes suivant la durée et le niveau de la déformation appliquée : par exemple, de 60 secondes après un test en tension de $2500\mu\varepsilon$ à 100 minutes après un test en tension de $8800\mu\varepsilon$ (Joo *et al.*, 2007). Cependant, comme dans notre étude, la déformation résiduelle n'est pas identique après chaque endommagement mais a tendance à augmenter (ε_p normalisée diminue), nous pouvons faire l'hypothèse que les propriétés visqueuses de l'os ont été modifiées de manière irréversible. Cette hypothèse est confortée par différents auteurs (Joo *et al.*, 2007; Nyman *et al.*, 2009) qui ont montré que l'un des principaux paramètres viscoélastiques, le temps de relaxation (i.e. le temps caractéristique), est altéré de façon permanente après des tests en compression ou en tension, alors que le module sécant n'a que très peu varié.



Figure A3.3 : Exemple d'échantillon d'os humain avant (à gauche) et juste la fin d'une étape d'endommagement. Après quelques heures, l'échantillon reprend pratiquement sa forme initiale (à gauche).

Dans notre étude, il est possible de s'affranchir de la déformation réversible d'origine viscoélastique dans l'évaluation du module E_{LEBT} . En effet, avant chaque étape d'endommagement, les échantillons d'os cortical ont eu le temps de se relaxer, la courbure liée à la viscoélasticité de l'os a disparu. Ainsi, la valeur de E_{LEBT} mesurée au cours des premiers cycles de l'étape d'endommagement correspond à la valeur de E_{LEBT} de l'étape précédente affranchie du fluage réversible. La comparaison entre le module E_{LEBT} évalué à la fin de chaque étape d'endommagement (« *without recovery* ») et celui évalué après relaxation (« *after recovery* ») est présentée FigA3.4. Nous pouvons remarquer que le module E_{LEBT} après relaxation (1) n'est pas constant et (2) décroît plus lentement que le module E_{LEBT} sans relaxation. De plus, il faut noter que si nous appliquons le même traitement au module sécant E_{sec} , aucune tendance ne se dégage. Ces deux observations confortent l'hypothèse d'une

altération ciblant plus particulièrement les propriétés viscoélastiques sans modification des propriétés élastiques (E_{sec} ne varie pas).

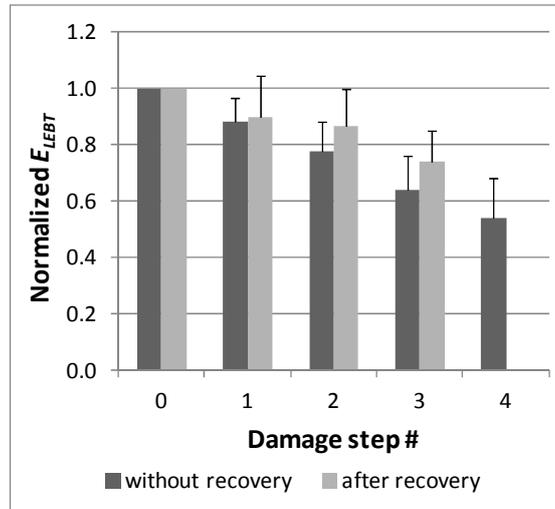


Figure A3.4 : Evolution du module LEBT normalisé moyen mesuré sans relaxation (directement à la fin du test de fatigue) ou après relaxation (juste avant l'étape d'endommagement suivant). Les barres d'erreur représentent l'écart type.

Pour résumer, nous avons mis en évidence le rôle crucial de la viscosité dans les expériences de fatigue, à travers le comportement élastique (E_{sec}) et anélastique (ϵ_p) des échantillons d'os. Ainsi la viscosité de l'os doit être prise en compte pour interpréter les résultats et caractériser la nature de l'endommagement. Nos résultats suggèrent aussi que l'endommagement précoce de l'os affecte principalement les propriétés viscoélastiques de l'os plutôt que les propriétés élastique, probablement à l'échelle nanoscopique (Fantner *et al.*, 2005; Mercer *et al.*, 2006; Winwood *et al.*, 2006; Gupta and Zioupos, 2008). Différentes sources à l'origine de la viscosité de l'os peuvent être altérées, comme les fibres de collagène minéralisées (Yamashita *et al.*, 2002; Fantner *et al.*, 2005; Gupta and Zioupos, 2008), le mouvement des lignes cémentantes (Behiri and Bonfield, 1980; Hiller *et al.*, 2003), ou bien l'écoulement des fluides (Garner *et al.*, 2000; Buechner *et al.*, 2001). En conséquence, les protocoles de fatigue devraient être adaptés pour prendre en compte la viscoélasticité de l'os tel que le proposent déjà certains auteurs (Fleck and Eifler, 2007; Joo *et al.*, 2007). Ainsi pendant les essais en fatigue, il serait pertinent de mesurer des paramètres comme le coefficient de Poisson (Morgan *et al.*, 2005), la déformation résiduelle (Morgan *et al.*, 2005), la vitesse de déformation plastique ou élastique (Winwood *et al.*, 2006), le temps de relaxation (Joo *et al.*, 2007) ou la dissipation d'énergie (Nyman *et al.*, 2007; Yeni *et al.*,

2007). Ces paramètres pourraient se révéler plus sensibles à l'endommagement précoce que les « classiques » modules élastiques (sécant, à la charge/décharge).

Finalement, le paramètre acoustique non-linéaire élastique α_f , dont nous avons montré que la variation est positivement corrélée à la variation de la densité de petites microfissures (voir chapitre 5), pourrait être aussi sensible à la dégradation des propriétés viscoélastiques de l'os. Cet endommagement « visqueux » ne serait pas de même nature que la microfissuration de la matrice osseuse.

Bibliographies

- Behiri, J., and Bonfield, W. (1980). "Crack velocity dependence of longitudinal fracture in bone," *Journal of Materials Science* **15**, 1841-1849.
- Buechner, P., Lakes, R., Swan, C., and Brand, R. (2001). "A broadband viscoelastic spectroscopic study of bovine bone: implications for fluid flow," *Annals of Biomedical Engineering* **29**, 719-728.
- Fantner, G. E., Hassenkam, T., Kindt, J. H., Weaver, J. C., Birkedal, H., Pechenik, L., Cutroni, J. A., Cidade, G. A. G., Stucky, G. D., and Morse, D. E. (2005). "Sacrificial bonds and hidden length dissipate energy as mineralized fibrils separate during bone fracture," *Nature materials* **4**, 612-616.
- Feng, X. Q., and Yu, S. W. (2010). "Damage Micromechanics for Constitutive Relations and Failure of Microcracked Quasi-Brittle Materials," *International Journal of Damage Mechanics* **19**, 911.
- Fleck, C., and Eifler, D. (2007). "Influence of the Loading Rate on the Cyclic Deformation Behaviour and the Damage Accumulation of Cortical Bone Specimens Under Three Point Bending," *Advanced Engineering Materials* **9**, 1069-1076.
- Garner, E., Lakes, R., Lee, T., Swan, C., and Brand, R. (2000). "Viscoelastic dissipation in compact bone: implications for stress-induced fluid flow in bone," *Journal of biomechanical engineering* **122**, 166.
- Griffin, L. V., Gibeling, J. C., Martin, R. B., Gibson, V. A., and Stover, S. M. (1999). "The effects of testing methods on the flexural fatigue life of human cortical bone," *Journal of Biomechanics* **32**, 105-109.
- Gupta, H., and Zioupos, P. (2008). "Fracture of bone tissue: The \square hows \square and the \square whys \square ," *Medical Engineering & Physics* **30**, 1209-1226.
- Hiller, L., Stover, S., Gibson, V., Gibeling, J., Prater, C., Hazelwood, S., Yeh, O., and Martin, R. (2003). "Osteon pullout in the equine third metacarpal bone: effects of ex vivo fatigue," *Journal of orthopaedic research* **21**, 481-488.
- Joo, W., Jepsen, K. J., and Davy, D. T. (2007). "The effect of recovery time and test conditions on viscoelastic measures of tensile damage in cortical bone," *Journal of Biomechanics* **40**, 2731-2737.
- Landrigan, M., and Roeder, R. (2009). "Systematic error in mechanical measures of damage during four-point bending fatigue of cortical bone," *Journal of biomechanics* **42**, 1212.
- Lemaitre, J., and Dufailly, J. (1987). "Damage measurements," *Engineering Fracture Mechanics* **28**, 643-661.
- Mercer, C., He, M., Wang, R., and Evans, A. (2006). "Mechanisms governing the inelastic deformation of cortical bone and application to trabecular bone," *Acta biomaterialia* **2**, 59-68.

- Morgan, E. F., Lee, J. J., and Keaveny, T. M. (2005). "Sensitivity of multiple damage parameters to compressive overload in cortical bone," *Journal of biomechanical engineering* **127**, 557.
- Nyman, J. S., Leng, H., Neil Dong, X., and Wang, X. (2009). "Differences in the mechanical behavior of cortical bone between compression and tension when subjected to progressive loading," *Journal of the mechanical behavior of biomedical materials* **2**, 613-619.
- Nyman, J. S., Roy, A., Tyler, J. H., Acuna, R. L., Gayle, H. J., and Wang, X. (2007). "Age related factors affecting the postyield energy dissipation of human cortical bone," *Journal of orthopaedic research* **25**, 646-655.
- Pattin, C. A., Caler, W. E., and Carter, D. R. (1996). "Cyclic mechanical property degradation during fatigue loading of cortical bone," *Journal of Biomechanics* **29**, 69-79.
- Winwood, K., Zioupos, P., Currey, J. D., Cotton, J. R., and Taylors, M. (2006). "Strain patterns during tensile, compressive, and shear fatigue of human cortical bone and implications for bone biomechanics," *Journal of Biomedical Materials Research Part A* **79A**, 289-297.
- Yamashita, J., Li, X., Furman, B. R., Rawls, H. R., Wang, X., and Agrawal, C. (2002). "Collagen and bone viscoelasticity: a dynamic mechanical analysis," *Journal of biomedical materials research* **63**, 31-36.
- Yeni, Y. N., Shaffer, R. R., Baker, K. C., Dong, X. N., Grimm, M. J., Les, C. M., and Fyhrie, D. P. (2007). "The effect of yield damage on the viscoelastic properties of cortical bone tissue as measured by dynamic mechanical analysis," *Journal of Biomedical Materials Research Part A* **82A**, 530-537.
- Zioupos, P., Hansen, U., and Currey, J. D. (2008). "Microcracking damage and the fracture process in relation to strain rate in human cortical bone tensile failure," *Journal of biomechanics* **41**, 2932-2939.

ANNEXE 4. (CHAPITRE 5)

VARIATION DES PARAMETRES ACOUSTIQUES LINEAIRES ET NON-LINEAIRES AU COURS DE L'ENDOMMAGEMENT

Pour des raisons de clarté, nous n'avons pas décrit dans le corps de l'étude du chapitre 5, la variation des paramètres non-linéaires tels que le paramètre dissipatif α_Q ou le rapport de Read, ni des paramètres linéaires que sont le module élastique E_{us} et le facteur de qualité Q . Comme leur variation est intéressante, nous allons présenter et commenter les résultats obtenus pour les différents paramètres acoustiques au cours de l'endommagement progressif.

A4.1. Les paramètres non-linéaires α_f , α_Q et le rapport de Read

Le paramètre non-linéaire dissipatif α_Q est calculé à partir des courbes de résonance obtenues par la mesure NRUS en suivant la méthode décrite dans le chapitre 4. La variabilité de la mesure de α_Q a été évaluée de la même manière que pour α_f . Nous avons trouvé un coefficient de variation moyen de α_Q égal à 8.2%, similaire à celui de α_f . Les valeurs initiales du paramètre non-linéaire α_Q s'échelonnent entre 1.5 et 3.3, sauf pour un échantillon ayant une non-linéarité dissipative α_Q plus élevée ($\alpha_Q=4.9$) (Table A4.1). Cet échantillon avait par ailleurs déjà montré une non-linéarité élastique α_f importante ($\alpha_f=-15.5$). La valeur moyenne initiale de α_Q égale 2.3 ± 0.8 . Après la dernière étape d'endommagement, les valeurs de α_Q se situent entre 1.6 et 3.8 avec une valeur moyenne de 2.7 ± 0.8 .

La variation du paramètre non-linéaire dissipatif ($\Delta\alpha_Q/\alpha_Q$) après chaque étape d'endommagement est représentée Fig.A4.1. Afin de pouvoir comparer les tendances des paramètres α_f et α_Q , nous avons choisi de ne pas faire apparaître les trois mêmes échantillons présentant des valeurs extrêmes de α_f (ind04ech03, ind04ech07, ind05ech03). Une augmentation du paramètre α_Q est visible à l'étape 4, avec une variation médiane $\Delta\alpha_Q/\alpha_Q$ égale à 13%. Cette observation est confirmée par l'analyse de variance non paramétrique mono-factorielle sur mesures répétées (test de Friedman). En effet, aucun effet significatif de

l'endommagement n'est mis en évidence sur α_Q pour les échantillons ayant subi trois étapes d'endommagement (Fig.A4.2b). Par contre, l'effet de l'endommagement sur α_Q devient significatif pour le groupe d'échantillons ayant subi les quatre étapes d'endommagement ($p < 0.05$, $F = 3.9$, Test de Friedman) (Fig.A4.2a). Dans ce cas, on trouve une différence significative entre la dernière étape endommagement (étape 4) et l'étape initiale, et les étapes une et trois.

Il semble donc que le paramètre non-linéaire dissipatif α_Q soit moins sensible que le paramètre α_f à l'endommagement précoce de l'os. Cette observation est confortée par une autre étude comparant les deux paramètres lors d'un endommagement progressif de matériaux composites à fibres de carbone (Van den Abeele *et al.*, 2009).

Le rapport de Read r vaut en moyenne 0.65 ± 0.12 avant l'endommagement avec des valeurs comprises entre 0.47 et 0.84. A la fin de la dernière étape d'endommagement, $r = 0.50 \pm 0.07$ avec des valeurs comprises entre 0.36 et 0.57. Sur les trois premières étapes d'endommagement, le paramètre de Read décroît progressivement ($p < 0.05$), conformément aux variations observées pour α_f (qui augmente en valeur absolue) et α_Q (qui ne change pas). Pour le groupe d'échantillons ayant subi les quatre étapes d'endommagement, on n'observe pas de différences significative entre le paramètre de Read à l'étape 4 et ses valeurs aux étapes 1 à 3. Ceci peut s'expliquer par les augmentations simultanées des non-linéarités élastique et dissipative entre l'étape 3 et l'étape 4 (voir Fig.A4.3).

Nous observons donc que (i) le rapport de Read mesuré dans l'os cortical humain intact et endommagé diffère de la valeur $4/3$ prédite pour un matériau hystérétique quadratique (voir paragraphe 2.2.2 du chapitre 2), (ii) le rapport de Read évolue au fur et à mesure de l'endommagement.

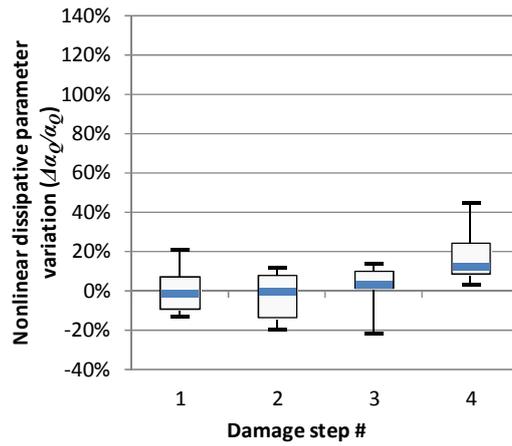


Figure A4.1 : Evolution de la variation du paramètre non-linéaire dissipatif ($\Delta\alpha_Q/\alpha_Q$) après chaque étape d'endommagement.

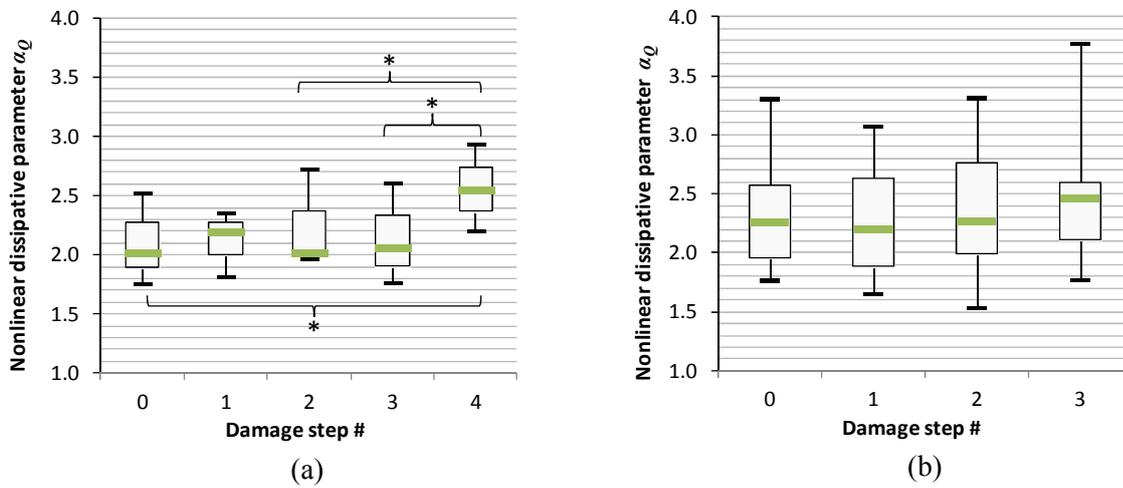


Figure A4.2: Evolution du paramètre non-linéaire α_Q après chaque étape d'endommagement, (a) pour les échantillons ayant subi 4 étapes d'endommagement et (b) pour les échantillons ayant subi 3 étapes d'endommagement. (*) signifie une différence significative ($p < 0.05$) entre deux étapes.

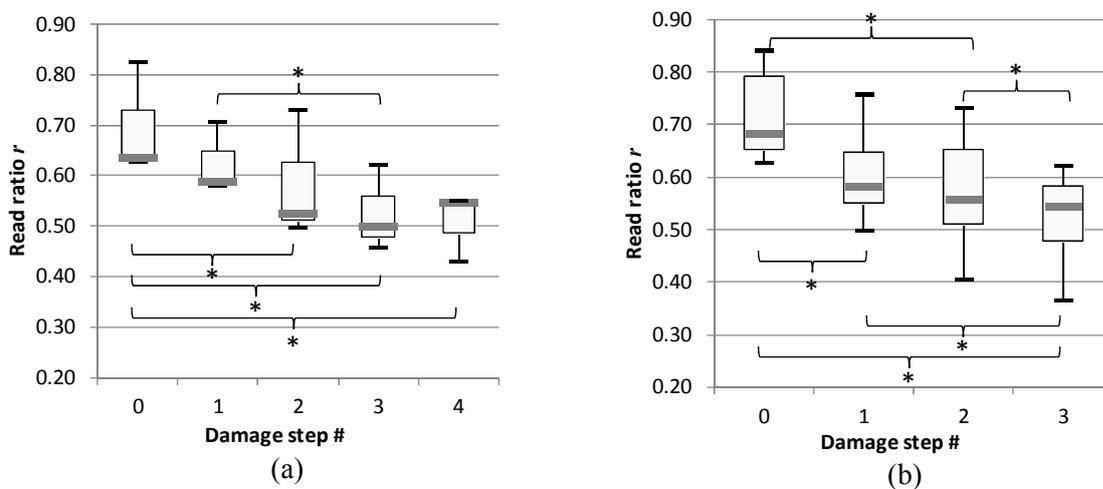


Figure A4.3: Evolution du rapport de Read r après chaque étape d'endommagement, (a) pour les échantillons ayant subi 4 étapes d'endommagement et (b) pour les échantillons ayant subi 3 étapes d'endommagement. (*) signifie une différence significative ($p < 0.05$) entre deux étapes.

<i>Nom des échantillons</i>	α_Q initial	α_Q final	α_f initial	α_f final	r initial	r final
ind01ech03	1.8	2.2	-6.0	-6.4	0.47	0.54
ind01ech06	1.9	2.0	-4.3	-6.0	0.67	0.52
ind01ech07	1.7	2.2	-5.0	-6.0	0.54	0.57
ind01ech09	2.0	2.2	-5.1	-6.3	0.63	0.55
ind03ech01	1.8	2.5	-4.3	-7.3	0.64	0.55
ind03ech02	2.5	2.9	-4.8	-10.7	0.82	0.43
ind03ech05	2.3	2.0	-4.6	-5.8	0.77	0.54
ind03ech06	3.3	2.6	-6.2	-6.5	0.84	0.62
ind04ech03	1.5	3.3	-4.7	-12.8	0.49	0.40
ind04ech04	4.9	4.7	-15.5	-15.3	0.49	0.49
ind04ech07	2.6	3.8	-6.0	-16.2	0.68	0.36
ind04ech11	2.3	2.5	-4.7	-7.1	0.76	0.54
ind05ech03	2.0	3.6	-4.4	-15.4	0.71	0.37
ind05ech05	1.9	2.2	-4.5	-6.2	0.67	0.55
ind05ech06	2.1	2.2	-5.4	-6.9	0.61	0.50
ind05ech10	1.7	1.6	-4.8	-4.7	0.56	0.52
Moyenne	2.3	2.7	-5.6	-8.7	0.65	0.50
Ecart type	0.8	0.8	2.7	4.0	0.12	0.07

Table A4.1: Valeurs initiales et finales du paramètre non-linéaire élastique (α_f) et dissipatif (α_Q) ainsi que du rapport de Read (r) de tous les échantillons.

A4.2 Comparaison entre les paramètres linéaires et non-linéaires

Nous avons évalué la reproductibilité des paramètres linéaires. La variabilité du module d'Young ultrasonore E_{us} est 2.3% et celle du facteur de perte ζ ($\zeta = 1/2Q$) est 5.7%.

Les valeurs de E_{us} et ζ sont représentées à chaque étape d'endommagement pour le groupe d'échantillons ayant subi trois étapes (E_{us} : Fig.A4.4b & ζ : Fig.A4.5b) et quatre étapes (E_{us} : Fig.A4.4a & ζ : Fig.A4.5a). Le module élastique E_{us} décroît progressivement au cours des étapes 1 à 3, puis augmente à l'étape 4. Le facteur de perte ζ augmente progressivement au cours des étapes 1 à 3, puis diminue à l'étape 4. Notons que comme pour le facteur de perte ζ , la variation du module E_{us} s'inverse après la quatrième étape d'endommagement. La variation des deux paramètres linéaires ζ et E_{us} n'est donc pas monotone avec l'endommagement. L'effet endommagement est significatif sur E_{us} et ζ pour le groupe d'échantillons ayant subi les 3 premières étapes d'endommagement et également pour le groupe des échantillons ayant subi les 4 étapes d'endommagement ($p < 0.05$, Test de Friedman) (Fig.A4.4 et Fig.A4.5). La comparaison par paire a posteriori indique des différences significatives entre la plupart des étapes d'endommagement pour E_{us} (Fig.A4.4) et

et ζ (Fig.A4.5). En particulier, E_{us} augmente tandis que ζ diminue de manière significative après la quatrième étape d'endommagement (Fig.A4.4a et Fig.A4.5a).

Les variations relatives des paramètres linéaire élastique ($\Delta E_{US}/E_{US}$) et dissipatif ($\Delta\zeta/\zeta$) pour l'ensemble des échantillons et des étapes d'endommagement sont représentée Fig.A4.6. Les tendances sont les mêmes que celles qui sont décrites ci-dessus pour les valeurs de E_{us} et ζ . La variation relative maximale est de -7% après la troisième étape d'endommagement pour le module E_{us} et de 15% pour le facteur de perte ζ . Rappelons que les variations relatives maximales des paramètres non-linéaires α_f et α_Q , atteintes à la quatrième étape d'endommagement, sont de 32% et 13%, respectivement. La variation du module d'Young E_{us} est négativement et significativement corrélée à celle du facteur de perte ζ ($r=0.74$, $p=0.001$, test de Spearman). Enfin, aucune corrélation significative n'existe entre la variation des paramètres linéaires et l'une des caractéristiques micro-architecturales de l'endommagement estimées par imagerie haute résolution, la densité de petites fissures nouvellement créées (Cr.Dn.Q1). Rappelons que la variation du paramètre non-linéaire α_f est significativement corrélée à Cr.Dn.Q1.

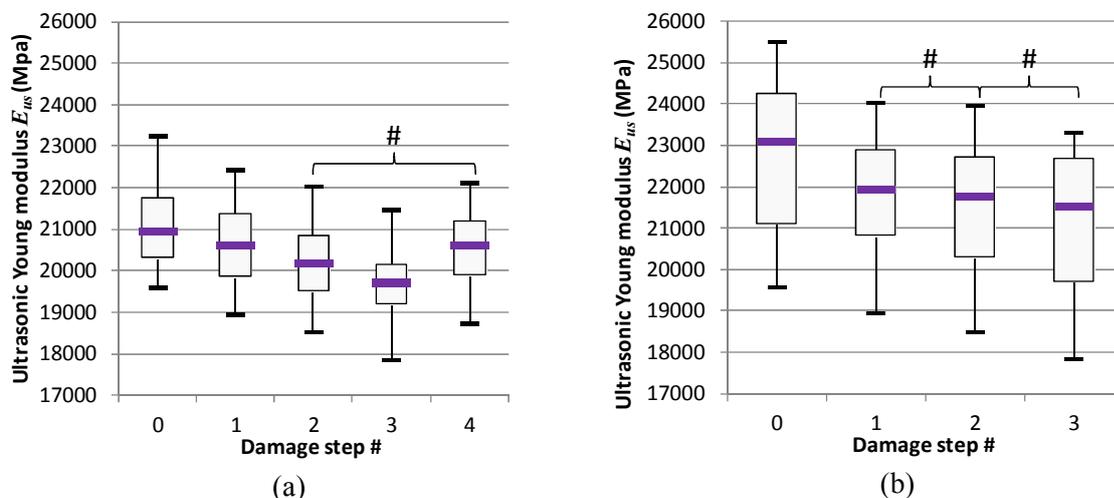


Figure A4.4: Evolution du paramètre linéaire E_{US} après chaque étape d'endommagement, (a) pour les échantillons ayant subi 4 étapes d'endommagement et (b) pour les échantillons ayant subi 3 étapes d'endommagement. (#) signifie une différence non significative ($p > 0.05$) quand toutes les autres combinaisons sont significatives.

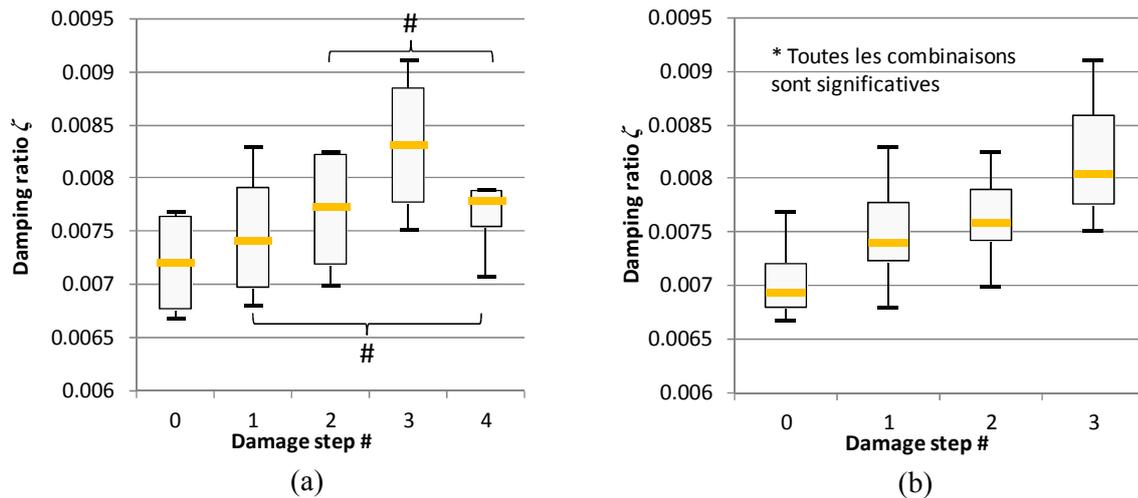


Figure A4.5: Evolution du paramètre linéaire ζ après chaque étape d'endommagement, (a) pour les échantillons ayant subi 4 étapes d'endommagement et (b) pour les échantillons ayant subi 3 étapes d'endommagement. (#) signifie une différence non significative ($p > 0.05$) quand toutes les autres combinaisons sont significatives.

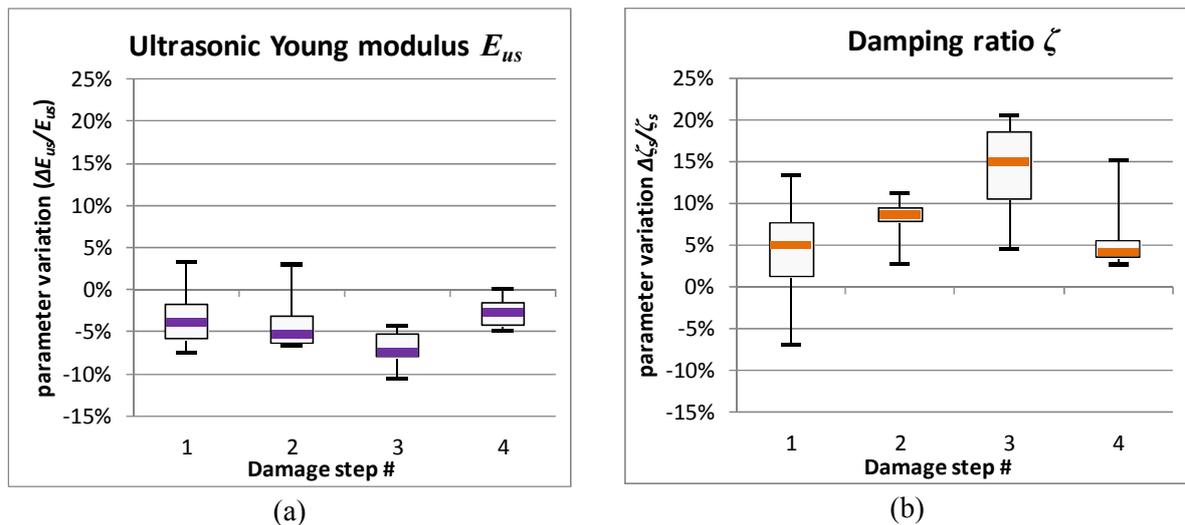


Figure A4.6: Evolution de la variation de la valeur médiane du module d'Young ultrasonore E_{us} et du facteur de perte ζ .

Nous montrons que les paramètres linéaires, tout comme les paramètres non linéaires, sont sensibles à l'endommagement précoce, avec une variation significative de E_{us} et ζ dès la première étape d'endommagement. D'autres études de suivi d'endommagement n'avaient pu mettre évidence cet effet, où paramètres linéaires et non linéaires étaient comparés (par exemple sur l'os cortical (Muller *et al.*, 2005; Muller *et al.*, 2006; Muller *et al.*, 2008) ou sur d'autres matériaux (Van den Abeele and De Visscher, 2000; Van den Abeele *et al.*, 2001; Van den Abeele *et al.*, 2009). Il se peut que le contrôle drastique des conditions expérimentales (en particulier la température et le taux d'humidité relatif) associé à la répétition des mesures,

nous ait permis d'atteindre une variabilité suffisamment faible (=2.3%) de la mesure pour détecter les faibles variations du module d'Young (<7%).

Au cours de l'expérience de fatigue, la variation des paramètres linéaires E_{us} et ζ n'est pas strictement monotone à mesure que l'endommagement augmente. La variation E_{us} et ζ liée à l'accumulation d'endommagement peut être perturbée par d'autres facteurs. Nous pensons qu'un de ces facteurs pourrait provenir d'une légère courbure permanente des baguettes d'os associée à la déformation plastique non-réversible qui persiste après la période de recouvrement (correspondant à la phase de relaxation décrite dans l'Annexe A2) lorsque les baguettes sont endommagées (cette hypothèse a été validée par simulation par éléments finis sous Comsol 3.5 (Stockholm, Suède)). Aucune corrélation significative n'existe entre la variation des paramètres linéaires et l'accumulation de petites fissures (Cr.Dn.Q1), contrairement au paramètre non-linéaire α_f . Ceci pourrait s'expliquer par le fait que les paramètres linéaires sont sensibles aux inclusions souples dans leur globalité (telles que les microfissures mais aussi les pores et autres cavités) tandis que le paramètre non-linéaire élastique α_f , par définition, est sensible spécifiquement aux sources de non-linéarités (telles que les microfissures).

Pour finir, aucune corrélation significative n'est trouvée entre les variations des paramètres dissipatifs (α_Q et ζ) ni entre les variations des paramètres élastiques (α_f et E_{us}).

En conclusion, nous observons une variation des paramètres linéaires et non linéaires de l'os cortical au cours de l'expérience d'endommagement. Leur variation n'est pas corrélée à celle des paramètres non-linéaires α_f et α_Q . Seule la variation du paramètre non-linéaire α_f est significativement corrélée à la variation d'une caractéristique du micro-endommagement précoce de l'os, la densité de petites fissures nouvellement formées. Des expériences complémentaires doivent être réalisées pour déterminer l'origine exacte de la variation de paramètres linéaires.

Bibliographie

- Muller, M., Mitton, D., Talmant, M., Johnson, P., and Laugier, P. (2008). "Nonlinear ultrasound can detect accumulated damage in human bone," *Journal of Biomechanics* **41**, 1062-1068.
- Muller, M., Sutin, A., Guyer, R., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2005). "Nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) applied to damage assessment in bone," *Journal of the Acoustical Society of America* **118**, 3946-3952.

- Muller, M., Tencate, J. A., Darling, T. W., Sutin, A., Guyer, R. A., Talmant, M., Laugier, P., and Johnson, P. A. (2006). "Micro-damage assessment using non-linear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) techniques: A feasibility study," *Ultrasonics* **44**, E245-E249.
- Van den Abeele, K., and De Visscher, J. (2000). "Damage assessment in reinforced concrete using spectral and temporal nonlinear vibration techniques," *Cement and Concrete Research* **30**, 1453-1464.
- Van den Abeele, K., Le Bas, P., Van Damme, B., and Katkowski, T. (2009). "Quantification of material nonlinearity in relation to microdamage density using nonlinear reverberation spectroscopy: Experimental and theoretical study," *The Journal of the Acoustical Society of America* **126**, 963.
- Van den Abeele, K., Sutin, A., Carmeliet, J., and Johnson, P. A. (2001). "Micro-damage diagnostics using nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS)," *Ndt & E International* **34**, 239-248.

Liste des publications et communications orales

Publications:

Article en preparation: Non destructive characterization of cortical bone micro-damage by Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy

J. Rivière, **S. Hauptert**, P. Laugier and P.A. Johnson, Nonlinear ultrasound : potential of the cross-correlation method for osseointegration monitoring, *The Journal of the Acoustical Society of America Express Letter (soumis)*

G. Renaud, J. Riviere, **S. Hauptert**, and P. Laugier, Reversible modification of nonlinear elastodynamics induced by acoustical self-conditioning in limestone, *The Journal of the Acoustical Society of America (soumis)*

J. Rivière, **S. Hauptert**, P. Laugier, T. Ulrich, P. Y. Le Bas, and P.A. Johnson, Time reversed elastic nonlinearity diagnostic applied to mock osseointegration monitoring applying two experimental models, *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 131, 2012.

S. Hauptert, G. Renaud, J. Riviere, M. Talmant, P.A. Johnson, and P. Laugier, High-accuracy acoustic detection of nonclassical component of material nonlinearity, *Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 130, 2011.

J. Rivière, G. Renaud, **S. Hauptert**, M. Talmant, P. Laugier, and P.A. Johnson, Nonlinear acoustic resonances to probe a threaded interface, *Journal of Applied Physics*, vol. 107, 2010.

Communications orales (1^{er} auteur):

S. Hauptert, S. Guerard, P.A. Johnson, D. Mitton, P. Laugier Nonlinear ultrasound monitoring of fatigue micro-damage accumulation in cortical bone. *IEEE Ultrasonic Symposium*, Orlando, FL, USA, Octobre 2011.

S. Hauptert, S. Guerard, P.A. Johnson, D. Mitton, P. Laugier. Nonlinear ultrasound monitoring of fatigue micro-damage accumulation in cortical bone. *3rd International Congress on Ultrasonics*, Gdansk, Pologne, Septembre 2011

S. Hauptert, S. Guerard, P.A. Johnson, D. Mitton, P. Laugier. Characterization of cortical bone microdamage by nonlinear resonant ultrasound spectroscopy. *International Society of Biomechanics*, Bruxelles, Belgique, Juillet 2011.

- S. Hauptert**, S. Guerard, P.A. Johnson, D. Mitton, P. Laugier. Nonlinear ultrasound monitoring of four-point bending fatigue induced micro-damage. *4th European Symposium on Ultrasonic Characterization of Bone*, Jyväskylä, Finlande, Juin 2011.
- S. Hauptert**, S. Guerard, P.A. Johnson, D. Mitton, P. Laugier. Nonlinear ultrasound monitoring of fatigue micro-damage accumulation in cortical bone, *16th International Conference on Nonlinear Elasticity in Materials*, Prague, République Tchèque, Juin 2011
- S. Hauptert**, G. Renaud, J. Riviere, M. Talmant, P. Laugier, and P. A. Johnson, Probing hysteretic elasticity in weakly nonlinear materials, IEEE Ultrasonics Symposium, San Diego, USA, Octobre 2010
- S. Hauptert**, G. Renaud, J. Rivière, P.A. Johnson, M. Talmant, P. Laugier. Probing hysteretic elasticity in weakly nonlinear materials. *15th International Conference on Nonlinear Elasticity in Materials*, Otranto, Italie, Juillet 2010.
- S. Hauptert**, J. Rivière, P. Laugier, P.A. Johnson. Monitoring bolt tightness using Nonlinear Ultrasound Spectroscopy (NRUS). *2nd International Congress on Ultrasonics*, Santiago de Chile, Chili, Janvier, 2009
- S. Hauptert**, G. Renaud, J. Rivière, P.A. Johnson, M. Talmant, P. Laugier. Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy adapted to small samples. *NL GDR Meeting*, BRISTOL, UK, Novembre 2009
- S. Hauptert**, T.J. Ulrich, P. Laugier P.A. Johnson. Monitoring bolt tightness using Nonlinear Elastic Wave Spectroscopy (NEWS). *13th International Conference on Nonlinear Elasticity in Materials*, Aix-en-Provence, France, Juin 2008

Résumé

La caractérisation du micro-endommagement et la compréhension de son rôle dans le métabolisme ou dans la fragilisation osseuse restent des challenges, tout particulièrement en raison de l'absence de techniques de mesures bien adaptées à son étude. Il apparaît donc nécessaire de développer de nouvelles techniques non-invasives pour détecter et suivre l'accumulation de micro-endommagement osseux, en particulier celui qui se manifeste par la présence de microfissures. L'objectif de la thèse est d'évaluer la sensibilité de la spectroscopie ultrasonore non-linéaire (NRUS) à l'accumulation du micro-endommagement osseux. La sensibilité et la reproductibilité de la technique NRUS ont tout d'abord été optimisées. Puis, deux groupes d'échantillons d'os cortical ont été prélevés sur des diaphyses fémorales humaines. Les spécimens du premier groupe ont été endommagés progressivement par fatigue en flexion 4-points. Le second groupe a subi un test de ténacité pour initier et propager de manière contrôlée une fissure unique. Nos résultats montrent que la non-linéarité mesurée des échantillons fatigués et fissurés augmente de manière significative après les étapes de fatigue ou le test de ténacité. De plus, nous observons une corrélation significative entre la variation relative du paramètre non-linéaire et l'augmentation de la densité de petites fissures (évaluée par microtomographie par rayonnement synchrotron). Enfin, le niveau de non-linéarité des spécimens fissurés est significativement corrélé à la longueur totale de la fissure. Ces résultats suggèrent que la technique NRUS optimisée est sensible à l'accumulation du micro-endommagement osseux.

Mots clés : *Acoustique non-linéaire, os, microfissure, biomécanique, histomorphométrie, microtomographie par rayonnement synchrotron (SR- μ CT)*

Abstract

Bone microdamage characterization as well as its involvement in bone metabolism or bone fragility remains a challenge, especially because no existing techniques are well suited to its measurement. Non invasive techniques for detecting and monitoring bone microcracks accumulation and propagation are thus highly desirable. The objective of this thesis was to evaluate the sensitivity of nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) measurements to the accumulation of damage in cortical bone by fatigue or by controlled crack propagation. First, NRUS method was optimized to achieve highly sensitive and reproducible bone nonlinearity measurements. Then, two groups of human cortical bone specimens were machined from the femoral mid-diaphysis. The first group was taken through a progressive fatigue protocol consisting of four steps of cyclic four-point bending. The second group was taken through a toughness protocol consisting of initiation and controlled propagation of a stable crack induced by 4-point bending mechanical loading. Our results evidenced a progressive increase of the nonlinear elastic parameter during fatigue testing or during toughness experiments. Moreover, the relative variation of nonlinear elasticity of the fatigued specimens was significantly related to the relative variation of the number density of small cracks assessed with micro-computed tomography, whereas in crack propagation experiments a significant relationship was found between the level of nonlinearity and total crack length. These results strongly suggest that NRUS measurements are sensitive to damage accumulation and bone non-linearity can be used as a marker of bone damage.

Keywords: *Nonlinear acoustics, bone, microcrack, biomechanics, histomorphometry, synchrotron radiation micro-computed tomography (SR- μ CT)*
